

---

# Mikro- und Nanofluidik auf piezoelektrischen Substraten

Christoph Josef Strobl

---



München 2005



---

# **Mikro- und Nanofluidik auf piezoelektrischen Substraten**

**Christoph Josef Strobl**

---

Dissertation der Fakultät für Physik  
der Ludwig-Maximilians-Universität München  
am Lehrstuhl für experimentelle Festkörperphysik

vorgelegt von  
Christoph Josef Strobl  
aus München

München, den 29. März 2005

Erstgutachter: Prof. Dr. A. Wixforth

Zweitgutachter: Prof. Dr. J. O. Rädler

Tag der mündlichen Prüfung: 29. April 2005

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>xiii</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Theorie und Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1 Akustische Wellen in Festkörpern . . . . .	3
2.2 Perowskite . . . . .	6
2.2.1 Substrate und ihre Eigenschaften . . . . .	6
2.2.2 Die Rayleigh-Welle . . . . .	9
2.2.3 Die Scherwelle . . . . .	11
2.3 Elektrische Wellenerregung auf Festkörpern . . . . .	12
2.4 Wechselwirkung OFW – Ladungsträger . . . . .	15
2.5 Hydrodynamik auf Oberflächenwellenbauteilen . . . . .	16
2.5.1 Wechselwirkung mit Festkörperschwingungen . . . . .	16
2.5.2 Modell des SAW streaming . . . . .	17
2.5.3 Akustisch getriebene Fluidik . . . . .	20
2.6 Leitfähigkeit eines Elektrolyten . . . . .	24
2.7 Elektrophorese . . . . .	28
2.7.1 Elektrophoretische Bewegung . . . . .	28
2.7.2 Eigenschaften und Begriffe der DNA . . . . .	29
2.7.3 Gelelektrophorese . . . . .	33
2.8 Eigenschaften der Carbonnanotubes . . . . .	34
<b>3 Probenpräparation</b>	<b>39</b>
3.1 Hintergrund . . . . .	39
3.2 Herstellung . . . . .	50
3.3 Probenhandhabung und Ergebnisdokumentation . . . . .	52
<b>4 Akustofluidisches Ordnen</b>	<b>53</b>
4.1 Ordnung durch akustisch induzierten Fluss . . . . .	53
4.1.1 Fluidik im Flüssigkeitsspalt . . . . .	55
4.1.2 Nanotubes unter Oberflächenwellen-Einfluss . . . . .	62
4.2 Scherwellen gestütztes Ausrichten . . . . .	64

4.3	Modellbildung zur Nanotubeausrichtung . . . . .	65
4.4	Flüssigkristalle unter Oberflächenwellen-Einfluss . . . . .	68
<b>5</b>	<b>Volumenmoden</b>	<b>75</b>
5.1	Bestimmung der HF-Eigenschaften für Scherwellenbauteile . . . . .	75
5.2	Mischen mit Scherwellen . . . . .	78
5.3	Elektrisches Feld der Oberflächenwelle in einer Flüssigkeit . . . . .	80
5.4	Modenkonversion . . . . .	84
5.4.1	Volumenmoden der Scherwellenbauteile . . . . .	84
5.4.2	Volumenmoden in Rayleighwellensubstraten . . . . .	86
5.5	Hybride Mischaufbauten . . . . .	88
<b>6</b>	<b>Elektrophoretische Separation</b>	<b>93</b>
6.1	Anreicherung . . . . .	93
6.2	Elektrolyte im akustisch getriebenen Fluss . . . . .	100
6.3	Akustischer Konzentrador . . . . .	102
<b>7</b>	<b>Gelelektrophorese</b>	<b>105</b>
7.1	Prozessieren eines Milligels . . . . .	105
7.1.1	Standardprozessierung eines Agarosegels . . . . .	105
7.1.2	Milligele zur Anwendung auf einem Chip . . . . .	106
7.2	Physikalische Bedeutung der Gelelektrophoresekomponenten . . . . .	108
7.3	Planare Geometrie der Gelelektrophorese . . . . .	110
7.4	Chip-Gelelektrophorese . . . . .	113
<b>8</b>	<b>Ausblick</b>	<b>119</b>
8.1	Oberflächenwelle und Moleküle . . . . .	119
8.2	Fluidik mit Scherwellen . . . . .	120
8.3	Fluidiksysteme mit kontinuierlichen Fluss und Separation . . . . .	122
8.4	Elektrophorese von PCR-Produkten . . . . .	123
<b>A</b>	<b>Konstanten und Berechnungen</b>	<b>127</b>
<b>B</b>	<b>Weitere Informationen zu den Experimenten</b>	<b>131</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>138</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>139</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>141</b>
	<b>Veröffentlichungsliste</b>	<b>143</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Rotation eines Koordinatensystems um den Winkel $\Theta$	7
2.2	Skizze einer Oberflächenwelle	10
2.3	Skizze einer horizontal polarisierten Scherwelle	11
2.4	Skizzen verschiedener Schallwandlergeometrien	12
2.5	Abbildung eines Oberflächenwellenchips	13
2.6	Aufbau zur elektrischen Erzeugung von Oberflächenwellen	14
2.7	Einkoppeln der Oberflächenwelle in eine Flüssigkeit	18
2.8	Skizzierung des Aufbaus, um mit Oberflächenwellen Flüssigkeit zu bewegen.	20
2.9	akustisch getriebene Strömung in einem Tropfen in Draufsicht	21
2.10	Strömung in einem Tropfen durch eine OFW	21
2.11	Bewegung eines Tropfens durch eine OFW	22
2.12	Verformung eines Tropfens unter Einfluss einer OFW	22
2.13	Bildung einer Hydrathülle	25
2.14	Strukturformeln der Basen aus DNA und RNA	29
2.15	Strukturformeln der Desoxyribose, Ribose und des Phosphat	30
2.16	Beispiele für Nukleoside und Nukleotide	30
2.17	2D-Darstellung der DNA	32
2.18	Strukturformel polymerisierter Agarose	33
2.19	Theorie zum Wanderungsverhalten bei der Gelelektrophorese	34
2.20	Gitter eines Nanotubes	35
2.21	Verschiedene Arten der singel wall nanotubes	36
2.22	Bandstruktur von Graphit und singel wall nanotubes	37
3.1	Reinigung eines Chips	40
3.2	Prinzip der Fotolithographie	41
3.3	Prinzip des Lift-Offs	43
3.4	Beschichten eines Chips mittels PECVD	43
3.5	Modulation der Benetzungseigenschaft	44
3.6	Silansierungsvorgang	45
3.7	Definition des Kontaktwinkels	46
3.8	Tropfen auf Flächen unterschiedlicher Oberflächenchemie	46
3.9	Strukturierung der Benetzungsmodulation durch Sauerstoffplasmaätzen	47
3.10	TO8-Sockel mit Probe	48

3.11	Pogo-Pin Kontakt . . . . .	49
4.1	Vorversuche zur Nanotubeausrichtung . . . . .	54
4.2	Erzeugen eines Spaltes für einen Flüssigkeitsfilm . . . . .	56
4.3	Versuchsanordnung zum Mischen eines Flüssigkeitsfilms . . . . .	57
4.4	Stehende Wellen in einem Flüssigkeitsfilm . . . . .	58
4.5	Ausbildung einer Druckwelle in einem Flüssigkeitsfilm . . . . .	59
4.6	Ausbildungsort einer Überperiode in einem Flüssigkeitsfilm . . . . .	60
4.7	Umkehrung der Laufrichtung kleinster Tropfen . . . . .	60
4.8	Zwei Tropfen im Schallpfad . . . . .	61
4.9	AFM-Aufnahme von NT's mit der Oberflächenwelle ausgerichtet . . . . .	62
4.10	gekreuzt ausgerichtet Nanotubes . . . . .	63
4.11	Durch Scherwelle ausgerichtete Nanotubes . . . . .	65
4.12	Stehwellenmuster auf Scherwellenbauteil . . . . .	66
4.13	Modell zum Akustoelektrischen Ausrichten eines Nanotubes . . . . .	67
4.14	Prinzip einer Flüssigkristallanzeige . . . . .	69
4.15	Strukturformel eines Flüssigkristalls 5CB . . . . .	69
4.16	Aufbau zum Flüssigkristallausrichten . . . . .	70
4.17	Wirkung einer Oberflächenwelle auf einem Flüssigkristall im Spalt . . . . .	71
4.18	Verdeutlichung des Schallpfads mit Flüssigkristall . . . . .	74
5.1	Transmission eines unbeschichteten Scherwellenbauteils . . . . .	76
5.2	Zeitantwort eines Scherwellenbauteils . . . . .	77
5.3	Ausbreitung der transmittierten Volumenmode im Scherwellensubstrat . . . . .	78
5.4	Transmission eines Scherwellenbauteils bei verschiedenen Massenbelägen . . . . .	79
5.5	Versuchsaufbau zum Mischen eines Tropfen mit Scherwellen . . . . .	79
5.6	Detektion verschiedener Salzlösungen mit Scherwellen . . . . .	81
5.7	Fit eines Relaxationsmodells an die Transmissionsmessung eines mit Elektrolyt benetzten Scherwellenbauteils . . . . .	83
5.8	Mischen eines Tropfens auf der Chipunterseite . . . . .	85
5.9	Freitragender Aufbau zum Beobachten des Mischens auf der Chipunterseite . . . . .	87
5.10	Hybrider Mischeraufbau auf Chipunterseite . . . . .	89
5.11	Hybrider Mischeraufbau auf Chipoberseite . . . . .	90
5.12	Weg der Schallenergie im Hybridmischer . . . . .	91
6.1	Skizze und Bild eines Separationschips . . . . .	94
6.2	Strukturformel von Bromphenolblau . . . . .	95
6.3	Geometrie der Trenneinheit des Separationschip aus Abb. 6.1 . . . . .	96
6.4	Bildsequenz eines Versuches mit dem Separationschip . . . . .	97
6.5	Darstellung der Teilwege in einem der beiden Teilkreisläufe und die dazugehörigen Geschwindigkeiten . . . . .	98
6.6	Verwirbelung der Partikel bei Eintritt der Oberflächenwelle ins Fluidische System . . . . .	98



6.7	Elektrisches Feld im Separator . . . . .	99
6.8	Skizze eines Chips zum Test des Oberflächenwelle induzierten Molekültransports . . . . .	101
6.9	Konzentrationserhöhung im Schallpfad . . . . .	103
7.1	Querschnitt durch eine Gelelektrophoresekammer . . . . .	109
7.2	Elektrisches Feld in einem Gel mit planaren Elektroden . . . . .	111
7.3	Elektrophoretische Bewegung in einem nicht geradlinigen Gel . . . . .	113
7.4	Einfluss der Taschenposition auf die Qualität der DNA-Banden . . . . .	114
7.5	Skizze einer Auf-Chip-Gelelektrophorese . . . . .	115
7.6	Ergebnis einer Auf-Chip-Gelelektrophorese . . . . .	116
7.7	Störung der Gelelektrophorese durch eine laterale Leiterbahn . . . . .	117
7.8	Gelelektrophorese über einer lateralen Leiterbahn . . . . .	118
8.1	Auftragung eines akustisch induzierten Stroms gegen die HF-Leistung und Frequenz . . . . .	120
8.2	Quantisierter Ladungsträgertransport durch ein akustisch ausgerichtetes Nanotube . . . . .	121
8.3	Energieübertragung mit Scherwellen . . . . .	122
8.4	Ablauf einer PCR . . . . .	125

Hinweis: Einige der Bilder wurden Filmaufnahmen entnommen, die während der Versuchsdurchführung gewonnen wurden. Bilder, die aus Filmaufnahmen stammen, haben einen Verweis, aus welchem Film sie stammen. Die Filme liegen im Mpeg-Format vor und befinden sich auf einer Extra-CD. Einzig der Film `Anreich_Zeitraffer_Divx` ist im DivX-Format. Der Name des Films verweist zusätzlich auf ein neues PDF-Dokument, das sich bei Anklicken des Namens öffnet. Der Film kann im neuen PDF-Dokument durch Mausklick gestartet werden. Wenn nicht anders angegeben, sind die Filme in Echtzeit.



# Tabellenverzeichnis

2.1	Umindizierung in der Kontinuumstheorie . . . . .	7
2.2	Tensoreinträge für $\text{LiNbO}_3$ und $\text{LiTaO}_3$ . . . . .	8
2.3	Materialkonstanten der im Experiment verwendeten Substrate . . . . .	9
2.4	Einfluss einer Oberflächenwelle auf eine Flüssigkeit . . . . .	21
2.5	Ionenbeweglichkeit . . . . .	27
2.6	Die $\alpha$ -Parameter verschiedener Salze in wässriger Lösung . . . . .	27
2.7	Eigenschaften einiger Nukleotide . . . . .	31
3.1	Spannungsreihe der Metalle . . . . .	49
5.1	Haupt- und Nebenresonanzen auf einem Scherwellenbauteil . . . . .	76
5.2	Fitwerte zu Abb. 5.7 . . . . .	82
7.1	Zusammenhang zwischen DNA-Fragmentlänge und Agarosekonzentration zur Verwendung von Agarose als Trennmatrix . . . . .	106
7.2	Beobachtung des Benetzungsverhaltens einer Agaroselösung auf verschiedenen Oberflächen . . . . .	108
7.3	Beweglichkeiten der Farbstoffe Bromphenolblau und Xylencyanol . . . . .	109
B.1	Gleichstromleitfähigkeit einer $\text{NaCl}$ -Lösung bei $20^\circ\text{C}$ . . . . .	132



# Zusammenfassung

Die Verwendung akustischer Oberflächenwellen (OFW) zum Transport kleinster Flüssigkeitsmengen stellt eine besonders elegante Methode dar ein mikrofluidisches System zu realisieren. Der Transport kleinster Flüssigkeitsmengen durch eine OFW bringt große Vorteile mit sich. Das System besitzt keine beweglichen Bauteile, ist von außen leicht zugänglich und wird ausschließlich durch Planartechnologie hergestellt.

Ein wesentlicher Bestandteil zur Anfertigung dieser Arbeit war die Untersuchung akustisch induzierter Mischvorgänge. Die Fluidik im flüssigkeitsgefüllten Spalt und speziell der Mischvorgang in einem engen Spalt wurde betrachtet. Mit diesen Betrachtungen erhielt man die Möglichkeit, die Wirkung des elektrischen Feldes der OFW, das bei Ausbreitung einer OFW auf einem piezoelektrischen Substrat vorhanden ist, zu untersuchen. Durch die Verringerung des mechanischen Einfluss' auf die Flüssigkeit ergab sich die Möglichkeit die Wirkung des elektrischen Feldes der OFW auf eine im Spalt befindliche Nanotubelösung zu beobachten. Füllte man eine Nanotubelösung in den Spalt, erfuhren die Nanotubes Kräfte durch die Fluidik und das elektrische Feld. Das Zusammenspiel der beiden Kräfte bietet die Möglichkeit Nanotubes auszurichten. Wie Nanotubes wurden auch Flüssigkristallmoleküle ausgerichtet und der dazu notwendige Aufbau in eine geeignete Optik integriert. Bei den Untersuchungen erwiesen sich Scherwellenbauteile als geeignete Testsysteme die Ergebnisse einer weiteren Prüfung zu unterziehen. Mit Untersuchung der Eigenschaften der Scherwellenbauteile, zeigte sich ihre Einsatzmöglichkeit in der Mikrofluidik für Aktorik und Sensorik. Mit Verwendung der Scherwellenbauteile bot sich im weiteren an Volumenmoden und Modenkonversion zu studieren. Es zeigte sich, dass Volumenmoden in der akustisch getriebenen Fluidik sehr vorteilhaft eingesetzt werden können, um kleinste Mengen Flüssigkeiten zu mischen. Dazu zeigte sich die Möglichkeit auf, die Technik der akustisch getriebenen Fluidik auf beliebige Materialien zu erweitern und für Mischeraufbauten zu nutzen.

Neben dem Mischen verschiedener Bestandteile ist die Trennung verschiedener Inhalte einer Flüssigkeit betrachtet worden. Unter Verwendung elektrischer Felder wurde Separation eines elektrophoretisch beweglichen Farbstoffs aus einem akustisch getriebenen Fluss in einem kontinuierlich fließenden System betrachtet. Bei diesen Untersuchungen wurde auch die Verwendbarkeit planarer Elektroden gezeigt und die Übertragbarkeit der Ergebnisse von Wasser auf Elektrolyte. Mit den Erfahrungen dieser Untersuchungen wurde zum Abschluss eine Gelelektrophorese für einen Chip mit akustisch getriebener Fluidik entwickelt. Das System lies sich ohne Technologiebruch in ein Gesamtsystem integrieren. Dieses Beispiel für eine Anwendung des Systems zeigt die Verwendbarkeit für Alltagsprobleme wie der Analyse.



# Kapitel 1

## Einleitung

Eine weit verbreitete Vorstellung eines Labors für naturwissenschaftliche Fragestellungen beinhaltet meist das Bild eines Raumes, das an die Zeiten der Alchemie und der frühen Chemie erinnern. Zumeist stellt man sich viele bunte Flüssigkeiten vor, die sich in Flaschen befinden, blubbern oder Röhren hinaufsteigen. In diesem Bild steckt auch zu Zeiten der exakten Wissenschaften auch noch ein wahrer Kern. Werden Substanzen auf chemischem Wege untersucht, so geschieht dies häufig in gelöster Form oder in einer flüssigen Umgebung. Will man einen Untersuchungsablauf automatisieren, muss man sich die Frage stellen, wie kann man Flüssigkeiten handhaben. Gesellt sich zu dieser Frage auch noch der Wunsch nach einer Beschleunigung der Untersuchungsmethode und einem geringeren Analytenverbrauch, bietet sich als Antwort eine Miniaturisierung des Untersuchungsaufbaus an.

Die Kerneinheit eines miniaturisierten Aufbaus muss ebenso wie sein makroskopischer Gegenpart in der Lage sein mit Flüssigkeiten umzugehen und wird daher ein mikrofluidisches System beinhalten. Die Miniaturisierung eines Fluidischen Systems geht dabei nicht ohne Schwierigkeiten von statten. Das simple Verkleinern bekannter Alltagsgegenstände wie Pumpen, Rohren, Ventilen usw. führt zu unlösbaren Problemen oder ist zu teuer. Daher werden andere Ansätze verfolgt, wie man mit kleinstmengen von Flüssigkeiten umgehen kann. Als Beispiele seien Elektroosmose [[Ajdari00](#)], electro wetting [[Welters98](#), [Srinivasan03](#)], liquid dielectrophoresis [[Jones01](#)] genannt. Mit diesen Methoden werden Flüssigkeiten aufgrund ihrer Leitfähigkeit oder Polarisierbarkeit bewegt. Meist werden dazu dreidimensionale Strukturen benötigt, die aufwändig herzustellen sind. Die Verwendung akustischer Oberflächenwellen zum Manipulieren von Flüssigkeiten stellt dabei im Vergleich eine ausgesprochen geeignete Möglichkeit dar. Da Bauteile auf Oberflächenwellenbasis bereits seit den 1960'er Jahren bekannt sind, kann man auf einen großen Erfahrungsschatz bauen, will man diese zum Flüssigkeitstransport benutzen. Bei der Herstellung eines Oberflächenwellenbauteils werden ausschließlich planare Prozesse angewendet. Mikrofluidische Systeme auf Oberflächenwellenbasis werden ebenfalls in rein planaren Prozessen hergestellt, wodurch ein Technologiebruch vermieden ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde untersucht, wie man elektrische Felder nutzen kann, um die Untersuchungsmethoden der Chemie und Biologie auf Chipgröße zu miniaturisieren.

Im Laufe der vorgelegten Arbeit wird sich ihr Charakter von Kapitel zu Kapitel langsam ändern. Beginnend mit den Grundlagen der Physik der Oberflächenwelle, Flüssigkeiten und einer Einführung der Begriffe der Biochemie, folgt eine Beschreibung der grundlegenden Prozessschritte zur Probenherstellung. Dabei werden die Prozessschritte motiviert, beschrieben und Hintergrundinformation gegeben. Die Beschreibung der Experimente erfolgt ab dem vierten Kapitel. Dabei wird zuerst auf das Ausrichten von Molekülen eingegangen. An dieser Stelle wurde reine Grundlagenforschung durchgeführt und alle Betrachtungen sind rein physikalisch motiviert. Dabei wird auch die Verwendung von Scherwellen in der Fluidik angedeutet. Im fünften Kapitel werden über die Scherwellen die Volumenmoden und die Modenkonversion eingeführt und ihre Einsatzmöglichkeiten in der Fluidik vorgestellt. Die Betrachtungen bleiben dabei rein physikalisch. Der Inhalt der Versuche bekommt in diesem Kapitel auch einen Bezug zur Anwendung. Die Verwendbarkeit der Scherwelle zum Mischen kleinster Flüssigkeitsmengen zeigt, dass eine Wellenmode, die bisher nur für sensorische Zwecke eingesetzt wurde, auch für Zwecke der Aktorik geeignet ist. Wie sich herausstellen wird, kann die Scherwelle auch als Testsystem für die Rayleighwelle verwendet werden, wodurch die Motivation geschaffen wird, den Einfluss elektrischer Felder auf die Fluidik zu untersuchen.

Im sechsten Kapitel wird daraufhin die Verwendbarkeit externer elektrischer Felder zur elektrophoretisch induzierten Separation betrachtet. Es wird die Verwendbarkeit planarer Elektroden untersucht und ein kontinuierlich strömendes Mikrofluidiksystem vorgestellt. Mit dem verwendeten Aufbau konnte ebenso untersucht werden, wie Elektrolyte auf akustisch getriebenen Systemen auf piezoelektrischen Substraten auf die Oberflächenwelle reagieren. An dieser Stelle fügen sich erstmals Teile der Bioanalytik ein und es entsteht eine Schnittstelle zwischen der Physik und den anderen Naturwissenschaften. In den Versuchen wurden die Fluidiksysteme physikalisch untersucht. Durch die Berührung mit der Bioanalytik deutet sich bereits eine Richtungsänderung an. Im siebten Kapitel wird mit Hilfe der Physik ein Gelelektrophoresesystem untersucht und anschließend miniaturisiert, damit es seine Anwendung in einem Bioanalytikchip finden kann. Mit Miniaturisierung einer Gelelektrophorese, wird auf einem Fluidikchip ein Auswertesystem integriert, womit man einen weiteren Schritt in Richtung Labor-auf-dem-Chip macht.

Mit dem Labor-auf-dem-Chip verbindet sich die Hoffnung, dass durch die Miniaturisierung die Methoden der Bioanalytik verbilligt werden können, Ressourcen geschont und Analysen beschleunigt werden. Mit einem ähnlichen Credo hatte die Entwicklung der integrierten Schaltungen zum Mikroprozessor mit nanoskaligen Strukturen zur PC-Revolution beigetragen, wodurch der heutige Alltag geprägt ist. Eine ähnliche Entwicklung erhofft man sich mit der Entwicklung des Labor-auf-dem-Chip im Bereich der Medizin, Pharmazie, Bioanalytik, Chemie und Biologie. Dabei kommt es, wie auch in dieser Arbeit, zu einer immer stärker werdenden interdisziplinären Zusammenarbeit der einzelnen Disziplinen mit der Physik.



# Kapitel 2

## Theorie und Grundlagen

### 2.1 Akustische Wellen in Festkörpern

Schwingungen in Festkörpern wurden bereits vor geraumer Zeit eingehend untersucht. Lord Rayleigh fertigte 1885 eine mathematische Abhandlung [\[Rayleigh85\]](#) über Erdbebenwellen an. Festkörperschwingungen können im Rahmen der Kontinuumsstheorie beschrieben werden. Diese Beschreibung soll an dieser Stelle dargelegt werden und auf piezoelektrische Festkörper erweitert werden. Im Rahmen der Kontinuumsstheorie wird ein Festkörper als ein Raumbereich betrachtet, der homogen mit Masse ausgefüllt ist und aus infinitesimalen Volumenelementen  $dV$  mit den Koordinaten  $\mathbf{x}$  besteht. Eine Deformation des Festkörpers verursacht eine Verschiebung der Volumenelemente zu den neuen Koordinaten  $\mathbf{x}' \rightarrow \mathbf{x} + \mathbf{u}(\mathbf{x})$ . Dabei ändern sich die Abstände benachbarter Volumenelemente  $\mathbf{x}$  und  $\mathbf{x} + d\mathbf{x}$ , andernfalls handelt es sich um eine Translation des gesamten Festkörpers. Die Deformation des Festkörpers wird unter Verwendung der Einsteinschen Summenkonvention durch die Gleichung

$$(d\mathbf{x}')^2 - (d\mathbf{x})^2 = 2S_{ij}dx_id x_j \quad (2.1)$$

mit dem Verzerrungstensor

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_k}{\partial x_j} \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \right) \quad (2.2)$$

beschrieben. Der quadratische Term kann vernachlässigt werden und der Verzerrungstensor vereinfacht sich zu

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.3)$$

mit der Symmetrie  $S_{ij} = S_{ji}$ . Wirkt nun ein Volumenelement auf ein benachbartes Volumenelement mit einer Kraft, dann kann diese nur über die Oberfläche der beiden

Volumenelemente geschehen. Es gilt

$$\mathbf{F} = \int_V \mathbf{f} dV = \int_{\partial V} T dA \quad , \quad (2.4)$$

wobei  $T$  der Spannungstensor ist und die Kraftdichte aus  $\mathbf{f} = \text{div } T$  folgt. Daraus erhält man die Bewegungsgleichung für ein Volumenelement

$$\varrho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \quad . \quad (2.5)$$

Die beiden Tensoren hängen über das verallgemeinerte Hooksche Gesetz

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} \quad (2.6)$$

zusammen. Dabei besitzt der vierstufige Tensor  $c$  81 Komponenten, die sich wegen der Symmetrie von Spannungs- und Verzerrungstensor sowie des Poynting-Theorems nach

$$c_{ijkl} = c_{jikl} = c_{ijlk} = c_{klij} \quad (2.7)$$

auf 21 unabhängige Komponenten reduzieren.

Da hier auf piezoelektrischem Material gearbeitet wird, muss das Hooksche Gesetz (2.6) um das elektrische Feld erweitert werden. Durch diese Verallgemeinerung erhält man die beiden Konstitutivgleichungen

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} - p_{kij} E_k \quad (2.8)$$

$$\text{und } D_i = \varepsilon_{ij} E_j + p_{ijk} S_{jk} \quad (2.9)$$

mit dem piezoelektrischen Tensor  $p_{ijk}$ , dem dielektrischen Tensor  $\varepsilon_{ij}$ , dem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  und der dielektrischen Verschiebung  $\mathbf{D}$ . Für die beiden Piezoelektrika Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ ) und Lithiumtantalat ( $\text{LiTaO}_3$ ) sind die verschiedenen Tensoren in Tabelle 2.2 auf Seite 8 aufgeführt.

Zuletzt betrachtet man statt des elektrischen Feldes das elektrische Potential über den Zusammenhang

$$E_i = -\frac{\partial \Phi}{\partial x_i} \quad . \quad (2.10)$$

Fasst man nun die Gleichungen (2.3), (2.5) und (2.9) zusammen und beachtet, dass man keine freien Ladungen hat ( $\text{div } \mathbf{D} = 0$ ), erhält man 4 gekoppelte Wellengleichungen (3 für die Ortskoordinaten und 1 für das Potential):

$$\varrho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} - c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_l} - p_{kij} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_i \partial x_k} = 0 \quad (2.11)$$

$$p_{ikl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_l} - \varepsilon_{ik} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_i \partial x_k} = 0 \quad . \quad (2.12)$$

Die Schallgeschwindigkeit erhält man im eindimensionalen Fall durch Eliminieren von  $\frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2}$ . Man bekommt eine Wellengleichung

$$\varrho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - \left( c + \frac{p^2}{\varepsilon} \right) \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = 0 \quad (2.13)$$

mit der Schallgeschwindigkeit

$$v = \tilde{v} + \Delta v = \sqrt{\frac{1}{\varrho} \left( c + \frac{p^2}{\varepsilon} \right)} = \sqrt{\frac{c}{\varrho} \left( 1 + \frac{p^2}{\varepsilon c} \right)} \quad (2.14)$$

Die piezoelektrischen Eigenschaften eines Materials führen zu einer Versteifung. Diese wird durch die elektromechanische Kopplungskonstante  $K_{eff}^2$  zum Ausdruck gebracht, die durch

$$K_{eff}^2 = \frac{p^2}{\varepsilon c} \quad (2.15)$$

definiert ist. Für die Schallgeschwindigkeit gilt dann

$$\tilde{v} + \Delta v = \sqrt{\frac{c}{\varrho}} \cdot \sqrt{1 + K_{eff}^2} \approx \tilde{v} \cdot \left( 1 + \frac{1}{2} K_{eff}^2 \right) \quad (2.16)$$

Die relative Schallgeschwindigkeitsänderung durch die Piezoelektrizität beträgt somit

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{K_{eff}^2}{2} \quad (2.17)$$

Da sich die Kopplungskonstanten aus den Materialkonstanten meist nicht analytisch bestimmen lassen, werden diese auf experimentellem Wege bestimmt. Dabei macht man sich den Umstand zu Nutze, dass die elektrischen Felder auf der Oberfläche durch eine Metallisierung kurzgeschlossen werden können. Dadurch ändert sich neben der Versteifung des Materials auch die Schallgeschwindigkeit. Es gilt im skalaren Fall

$$\frac{K_{eff}^2}{2} = \frac{v_{\text{frei}} - v_{\text{Kurzschluss}}}{v_{\text{frei}}} \quad (2.18)$$

mit den beiden Schallgeschwindigkeiten  $v$  für kurzgeschlossene bzw. freie, nicht metallisierte Oberflächen.

Neben der Schallgeschwindigkeit spielt auch der Begriff der Slowness [\[Auld73\]](#) eine wichtige Rolle. Für anisotrope Materialien ist die Schallgeschwindigkeit von der Ausbreitungsrichtung der Welle im Kristall abhängig. Im nicht piezoelektrischen Fall<sup>1</sup> vereinfachen sich die

---

<sup>1</sup>Im piezoelektrischen Fall würde man die Gleichung  $\varrho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \sum_{jkl} \underbrace{\left( c_{ijkl} + \frac{p_{kij} p_{ikl}}{\varepsilon_{ik}} \right)}_{c_{ijkl}^*} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l}$  betrachten.

Bewegungsgleichungen (2.11) und (2.12) zu

$$\varrho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \sum_{jkl} c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l} \quad . \quad (2.19)$$

Mit dem Ansatz einer ebenen Welle

$$u_j = A_j e^{i(k_j x_j - \omega t)} \quad \text{mit} \quad j = 1, 2, 3 \quad (2.20)$$

erhält man die Christoffel-Gleichung

$$\sum_j (\Gamma_{ij} - \varrho v^2 \delta_{ij}) A_j = 0 \quad \text{mit} \quad \Gamma_{ij} = \sum_{kl} c_{ijkl} n_k n_l \quad . \quad (2.21)$$

Sie verknüpft die Schallgeschwindigkeit in Richtung der Schallausbreitung entlang der Einheitsvektoren  $n_k$  und  $n_l$  mit dem Elastizitätstensor. Die Auswertung dieser Gleichung ergibt im Allgemeinen eine richtungsabhängige Schallgeschwindigkeit. Die Richtungsabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit wird mit dem Begriff der Slowness bezeichnet.

## 2.2 Perowskite

Im Rahmen dieser Arbeit wurde größtenteils mit den Materialien Lithiumniobat und Lithiumtantalat gearbeitet. Beide sind piezoelektrisch, was auf ihre Kristallstruktur zurückgeführt wird. Ihre Kristallstruktur ist die Perowskitstruktur und weist eine Rotationssymmetrie auf. Daher ist es zweckmäßig die Kristallrichtung in einem rotierten Koordinatensystem anzugeben. Als Koordinaten in diesem System werden die Eulerwinkel der Rotation verwendet.

Untersucht man, welche Schwingungen man auf der Oberfläche eines Kristalls mit Perowskitstruktur in Abhängigkeit vom Rotationswinkel  $\Theta$  um die x-Achse (s. Abb. 2.1) anregen kann, erhält man als Ergebnis, dass es ausgezeichnete Werte der Rotationskoordinate gibt [Moriizumi87]. Bei den Winkeln  $\Theta = 36^\circ$  und  $\Theta = 41^\circ$  kann man auf der Oberfläche reine Scherwellenmoden anregen. Beim Winkel  $\Theta = 128^\circ$  wird eine reine Rayleighmode angeregt. Bei allen anderen Winkel existieren nur Mischmoden. Daher ist der Rotationswinkel entscheidend und eine wichtige Angabe.

### 2.2.1 Substrate und ihre Eigenschaften

Zur Durchführung der Versuche in der vorliegenden Arbeit wurden die beiden Materialien Lithiumniobat und Lithiumtantalat verwendet. Die Tensoren, die die elektromechanischen Eigenschaften der beiden Materialien beschreiben, haben bis zu vier Dimensionen. Um den Umgang mit diesen Objekten zu erleichtern, werden sie durch eine Umindizierung in zweidimensionale Objekte umgewandelt. Die Indizes werden dabei nach der Voigt-Notation,

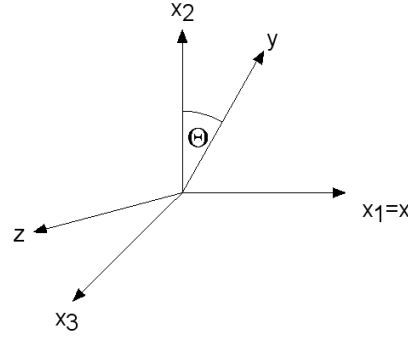


Abbildung 2.1: Rotation des Koordinatensystems um die x-Achse um den Winkel  $\Theta$ . Die x-Achse bleibt dabei unverändert und geht in die  $x_1$ -Achse über. Die y- und z-Achse ändern ihre Raumorientierung.

wie in Tabelle 2.1 aufgeführt, umgewandelt. Verzerrungstensor  $S$  und Spannungstensor  $T$  werden zu

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_{11} \\ S_{22} \\ S_{33} \\ 2S_{23} \\ 2S_{13} \\ 2S_{12} \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \mathbf{T} = \begin{pmatrix} T_{11} \\ T_{22} \\ T_{33} \\ T_{23} \\ T_{13} \\ T_{12} \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

transformiert.

(i,j) bzw. (k,l)	(1;1)	(2;2)	(3;3)	(2;3)	(1;3)	(1;2)
$\alpha$ bzw. $\beta$	1	2	3	4	5	6

Tabelle 2.1: Ein Index erhält nach diesem Schema einen neuen Index zugewiesen. So wird aus dem vierstufigen Tensor  $c_{ijkl}$  der zweistufige Tensor  $c_{\alpha\beta}$  und aus  $p_{ijk}$  wird  $p_{i\alpha}$ .

Die Randbedingung, die den Wellentyp bestimmen, hängen vom Rotationswinkel des Substrats ab. Dies bedingt, dass auch andere physikalische Größen wie z.B. die Schallgeschwindigkeit oder die Dielektrische Konstante von der betrachteten Kristallorientierung abhängen. So berechnet sich für rot 36°-Y cut X Prop. LiTaO<sub>3</sub> die Dielektrische Konstante wie folgt. Aufgrund der Wahl des Koordinatensystems betrachtet man eine Drehung der Tensoren für rot  $\alpha$  Substrat um den Eulerwinkel  $\Theta = \alpha - 90^\circ$ . Im betrachteten Fall heißt das eine Drehung um die x-Achse um  $-54^\circ$ . Die Achsentransformation wird mathematisch mit Drehmatrizen

$$\boldsymbol{\varepsilon}_t = R_x^\dagger(\Theta) \boldsymbol{\varepsilon} R_x(\Theta) \quad (2.23)$$

ausgedrückt. Für das Beispiel errechnet sich der neue dielektrische Tensor  $\boldsymbol{\varepsilon}_t$  zu

phys. Größe	Lithiumniobat	Lithiumtantalat
Elastizitätsmodul $c_{\alpha\beta}$ in $10^{10} \frac{\text{N}}{\text{m}^2}$	$\begin{pmatrix} 20,3 & 5,3 & 7,5 & 0,9 & 0 & 0 \\ 5,3 & 20,3 & 7,5 & -0,9 & 0 & 0 \\ 7,5 & 7,5 & 24,5 & 0 & 0 & 0 \\ 0,9 & -0,9 & 0 & 6,0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 6,0 & 0,9 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0,9 & 7,5 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 23,3 & 4,7 & 8,0 & -1,1 & 0 & 0 \\ 4,7 & 23,3 & 8,0 & 1,1 & 0 & 0 \\ 8,0 & 8,0 & 27,5 & 0 & 0 & 0 \\ -1,1 & 1,1 & 0 & 9,4 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 9,4 & -1,1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1,1 & 9,3 \end{pmatrix}$
piezoelektrischer Tensor $p_{ij}$ in $\frac{\text{C}}{\text{m}^2}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 3,7 & -2,5 \\ -2,5 & 2,5 & 0 & 3,7 & 0 & 0 \\ 0,2 & 0,2 & 1,3 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 2,6 & -1,6 \\ -1,6 & 1,6 & 0 & 2,6 & 0 & 0 \\ 0,1 & 0,1 & 1,9 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
dielektrischer Tensor $\epsilon_{ij}$	$\begin{pmatrix} 85 & 0 & 0 \\ 0 & 85 & 0 \\ 0 & 0 & 29 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 51 & 0 & 0 \\ 0 & 51 & 0 \\ 0 & 0 & 45 \end{pmatrix}$

Tabelle 2.2: Übersicht über die Einträge der Tensoren der beiden Piezoelektrika Lithiumniobat und Lithiumtantalat

$$\begin{aligned}\varepsilon_t &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \Theta & -\sin \Theta \\ 0 & \sin \Theta & \cos \Theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 51 & 0 & 0 \\ 0 & 51 & 0 \\ 0 & 0 & 45 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \Theta & \sin \Theta \\ 0 & -\sin \Theta & \cos \Theta \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} 51 & 0 & 0 \\ 0 & 47,1 & -2,9 \\ 0 & -2,9 & 48,9 \end{pmatrix}\end{aligned}$$

Mit der Gleichung

$$\varepsilon = \sqrt{\varepsilon_{11}\varepsilon_{33} + \varepsilon_{13}^2} \quad (2.24)$$

bestimmt sich die Dielektrische Konstante zu 50,0. Weitere richtungsabhängige Größen der Substrate sind neben richtungsunabhängigen Größen in Tabelle 2.3 aufgeführt.

phys. Größe	LiNbO <sub>3</sub>	LiTaO <sub>3</sub>
Kristallschnitt	rot 128°-Y cut X Prop.	rot 36°-Y cut X Prop.
Wellentyp	Rayleigh-Welle	SH-SAW
Dichte in $\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	4644	7450
$v_R$ bzw. $v_S$ in $\frac{\text{m}}{\text{s}}$	3980	4150
$K_{eff}^2$	0,053	0,047
Dielektrische Konstante $\varepsilon$	65	50

Tabelle 2.3: Materialkonstanten der im Experiment verwendeten Substrate

### 2.2.2 Die Rayleigh-Welle

In Festkörpern sind verschiedene Oszillationsmoden erzeugbar. Die Randbedingungen entscheiden darüber, um welche Mode es sich handelt. Zur Durchführung der Versuche der folgenden Kapitel wurde dabei hauptsächlich die Rayleighmode verwendet.

Die Randbedingungen für die Rayleighmode lautet, dass keine Kraft senkrecht zur Oberfläche des Festkörpers wirkt [Farnell77]. Formell bedeutet dies  $T_{3j}|_{x_3=0} = 0$ . Die zweite Randbedingung lautet, dass das elektrische Feld sich entweder frei in den Raum ausbreiten kann oder kurzgeschlossen ist. Die Differentialgleichungen (2.11) und (2.12) können für den isotropen Fall analytisch gelöst werden. Man erhält für  $x_3 \leq 0$  die Auslenkungen  $u_i$ :

$$u_1 = A(e^{k\beta_1 x_3} - \gamma e^{k\beta_2 x_3})e^{ik(x_1 - v_R t)} \quad (2.25)$$

$$u_2 = 0 \quad (2.26)$$

$$\text{und } u_3 = -ik\beta_1 A(e^{k\beta_1 x_3} - \gamma^{-1}e^{k\beta_2 x_3})e^{ik(x_1 - v_R t)} \quad (2.27)$$

mit  $\beta_1 = \sqrt{1 - \frac{v_R^2}{v_l^2}}$ ,  $\beta_2 = \sqrt{1 - \frac{v_R^2}{v_t^2}}$ ,  $\gamma = \sqrt{\beta_1 \beta_2}$ ,  $v_l = \sqrt{\frac{c_{11}}{\rho}}$ ,  $v_t = \sqrt{\frac{c_{44}}{\rho}}$ , dem Wellenvektor  $k$ , der Rayleighwellengeschwindigkeit  $v_R$  und der Amplitude  $A$ . Die Geschwindigkeit der Rayleighwelle<sup>2</sup> definiert sich durch

$$(\beta_2^2 + 1)^2 = 4\beta_1\beta_2 \quad . \quad (2.28)$$

Die Oberflächenwelle (OFW)<sup>3</sup> breitet sich als eine harmonische, transversale Welle mit geringem longitudinalem Anteil entlang der Substratoberfläche aus (s. Abb. 2.2).

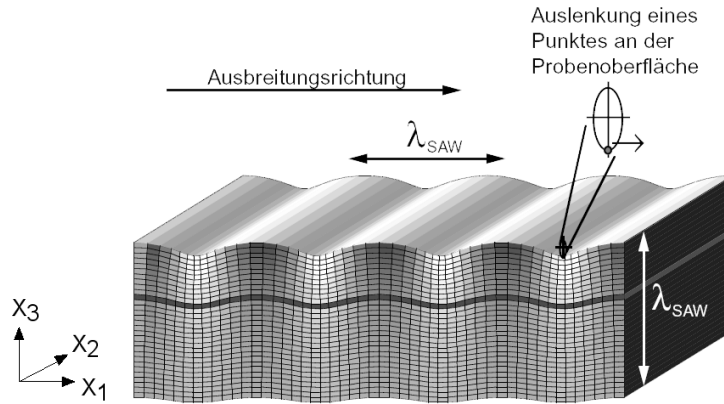


Abbildung 2.2: Skizze einer Oberflächenwelle

Die Amplitude der Auslenkungen fällt dabei mit der Tiefe ins Substrats näherungsweise exponentiell auf der typischen Längenskala einer Wellenlänge ab. Die Energie der Welle ist größtenteils auf die Oberfläche beschränkt. Die Volumenelemente an der Oberfläche bewegen sich retrograd auf Ellipsenbahnen. Das elektrische Potential  $\Phi$  kann für  $x_3 \leq 0$  näherungsweise durch

$$\Phi = \Phi_0 e^{kbx_3} e^{i(kx_1 - \omega t)} \quad (2.29)$$

mit komplexen  $b$ ,  $\text{Re}(b) > 0$  und  $\omega = v_R k$  wiedergegeben werden. Für das elektrische Feld gilt so

$$\mathbf{E} = -\nabla \Phi = -k\Phi_0 \cdot e^{kbx_3} e^{i(kx_1 - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} i \\ 0 \\ b \end{pmatrix} \quad (2.30)$$

Eine typische Auslenkung  $u$  für eine Oberflächenwelle ist etwa 0,1 nm bis 1 nm, wobei die Wellenlänge typische Größen um 10  $\mu\text{m}$  bis 100  $\mu\text{m}$  hat und die elektrischen Felder in den Größenordnungen von  $10^6 \frac{\text{V}}{\text{m}}$  bis  $10^7 \frac{\text{V}}{\text{m}}$  zu finden sind.

<sup>2</sup>Lösung s. Anhang A auf S. 128

<sup>3</sup>engl. surface acoustic wave, abgekürzt SAW



### 2.2.3 Die Scherwelle

Neben anderen Schwingungsmoden ist die Scherwelle eine weitere typische Schwingungs-mode in Festkörpern, die auch in den folgenden Kapiteln oftmals verwendet wurde. Die mathematische Beschreibung für diese Mode der Scherwelle besagt, dass der Wellenvektor  $\mathbf{k}$  normal auf den Auslenkungen der Volumenelemente eines Festkörpers steht. Sie besitzt somit keinen longitudinalen Anteil, ist eine reine transversale Mode. Die Scherwelle wird für  $x_3 \leq 0$  durch

$$u_j = A_j e^{k_S x_3} e^{i(k_S x_1 - \omega t)} \quad \text{mit } j = 1, 2 \quad (2.31)$$

$$u_3 = 0 \quad (2.32)$$

$$\Phi = \Phi_0 e^{k_S b x_3} e^{i(k_S x_1 - \omega t)} \quad (2.33)$$

mit komplexem  $b$  und  $\text{Re}(b) > 0$  beschrieben. In dieser Arbeit wird im weiteren mit einer horizontal polarisierten Scherwelle (SH-SAW, s. Abb. 2.3) gearbeitet, für die näherungsweise zusätzlich gilt

$$u_1 = 0 \quad (2.34)$$

bzw. die Auslenkung  $u_1$  ist vernachlässigbar [Nomura95, Campbell70]. Das elektrische Feld fällt ebenfalls exponentiell in das Volumen hinein ab. Das elektrische Feld einer Scherwelle ergibt sich zu

$$\mathbf{E} = -\nabla \Phi = -k_S \Phi_0 \cdot e^{k_S b x_3} e^{i(k_S x_1 - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} i \\ 0 \\ b \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

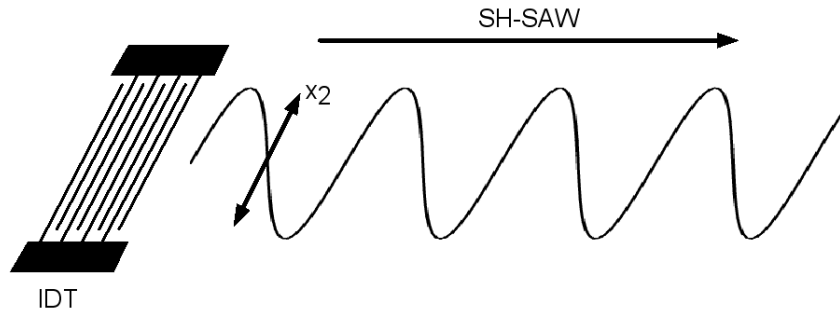


Abbildung 2.3: Eine Auslenkung der Volumenelemente bei einer horizontal polarisierten Scherwelle gibt es nur in der  $x_1$ - $x_2$ -Ebene der Oberfläche entlang der  $x_2$ -Richtung.

## 2.3 Elektrische Wellenerregung auf Festkörpern

Hochfrequenzfilter auf Basis der Oberflächenwellen<sup>4</sup> haben spätestens Mitte der 1980'er Jahre Einzug in den technischen Alltag gefunden. Ermöglicht wurde das durch die Nutzung des antipiezoelektrischen Effekts [White65]. Das in diesem Abschnitt dargelegte Erzeugungsprinzip wurde in dieser Arbeit verwendet.

Wenn man die Oberfläche eines piezoelektrischen Festkörpers stört, dann breitet sich diese Störung vom Ort ihres Entstehens mit Schallgeschwindigkeit aus. Befindet man sich vom Entstehungsort der Störung in der Entfernung  $p$ , so kann man bei einer erneuten Anregung am neuen Ort nach der Zeit  $t = \frac{p}{v_{Schall}}$  die Störung verstärken. Bei den hier verwendeten Oberflächenwellenbauteilen geschieht dies mit sogenannten Interdigitaltransducer (IDT) oder Schallwandlern. Dabei handelt es sich um zwei kammartige Metallstrukturen auf der Kristalloberfläche, deren Finger ineinander greifen (s. Abb. 2.4).

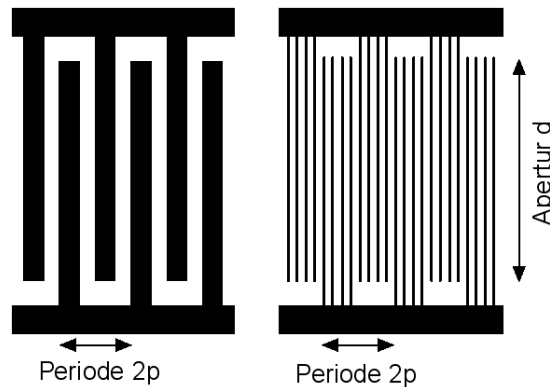


Abbildung 2.4: Skizzen zweier Schallwandlerstrukturen, links ein einfacher IDT, rechts ein 4-split IDT

Wenn ein sinusförmiges, elektrisches Signal an die Schallwandler angeschlossen wird, stört man den darunter liegenden Kristall und die Störung läuft mit Schallgeschwindigkeit fort. Wenn nun die Störung unter dem nächsten Finger ankommt und das Signal phasenrichtig erneut angeregt wird, wird die Störung verstärkt. Andernfalls verringert man die Amplitude des Signals oder löscht sie ganz aus. Daher werden Oberflächenwellenbauteile vorwiegend als Hochfrequenzfilter (HF-Filter) benutzt, weil sie einfach aufgebaut sind und eine hohe Güte besitzen. Bei phasenrichtiger Ansteuerung erhält man ein fortlaufendes periodisches Signal, eine Oberflächenwelle mit der Frequenz  $f$ . Die dabei notwendige Resonanzbedingung lautet  $f = \frac{v}{2p}$ . Dabei steht  $2p$  für den Abstand zweier Finger gleicher Polarität.

Will man mehrere Frequenzen mit demselben Bauteil erzeugen, so teilt man die Finger. Man spricht dabei auch von splitten. So kann man z.B. einen 4-split Schallwandler, der 4

<sup>4</sup>In diesem Abschnitt wird mit dem Begriff Oberflächenwelle sowohl die Rayleigh- als auch die Scherwelle als solche bezeichnet.

verschiedene Frequenzen erzeugt, herstellen. Dieser erzeugt zum einen die Grundfrequenz sowie zusätzlich die 3., 5. und 7. Harmonische, also immer die ungeradzahligen Vielfachen.

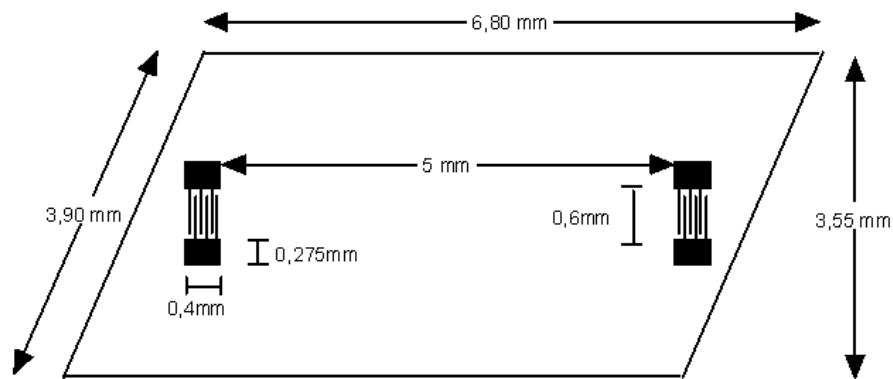


Abbildung 2.5: Abbildungen eines typischen Oberflächenwellchips; links und rechts ist je ein Schallwandler auf der Oberfläche. Während der eine Schallwandler eine Oberflächenwelle erzeugt, kann der andere Schallwandler durch den piezoelektrischen Effekt die Transmission der Oberflächenwelle detektieren.

Das angelegte HF-Signal wird mit Hilfe der logarithmischen dBm-Skala charakterisiert. Dabei wird die elektrische Leistung des HF-Signals nach  $P[\text{in dBm}] = 10 \cdot \log \frac{P[\text{in mW}]}{1 \text{ mW}}$  umgerechnet.  $P[\text{in mW}]$  ist dabei die Leistungsangabe, welche an einem  $50 \Omega$ -Widerstand abfällt.

Bei den verwendeten Proben ist die Schallwandlerstruktur symmetrisch aufgebaut, was bedeutet, dass die Schallwandler bidirektional strahlen und man somit doch die Hälfte der Leistung verliert, weil die Hälfte des Oberflächenwellensignals in die falsche Richtung abgestrahlt wird. Damit dieser Anteil im weiteren Verlauf nicht durch Reflektionen an der Kristallkante wieder zurück in den Schallpfad kommt, sind die Proben parallelogrammartig geschnitten. Die Oberflächenwelle wird dann an der schiefen Kante nicht in den Schallpfad zurückreflektiert und übt so keinen störenden Einfluss aus (s. Abb. 2.5).

Die technische Ausführung der Oberflächenwellenerzeugung (s. Abb. 2.6) ist äußerst einfach. Eine hochfrequente Wechselspannung wird mit einem Hochfrequenzgenerator (HF-Generator) erzeugt. Die Amplitude der Wechselspannung (HF-Signal) wird mit einem Verstärker erhöht. Das Ausgangssignal des Verstärkers wird direkt am Schallwandler angelegt, wo die Oberflächenwelle nach dem oben beschriebenen Prinzip erzeugt wird. Der Verstärker erfüllt bei diesem Aufbau eine weitere Funktion. Damit hochfrequente Wechselströme effizient übertragen werden können, müssen Verbraucher und Übergänge im Aufbau auf einen  $50 \Omega$ -Standard angepasst werden. Durch eine derartige Normierung werden Signalverluste durch Reflektionen minimiert. Der Widerstandswert übernimmt dabei die gleiche Bedeutung wie der Brechungsindex in der Optik. Sind die Widerstandswerte verschieden von der gewählten Norm, werden die Signale teilweise reflektiert. Erfüllt eine Probe bzw. die Schallwandler den Standardwert nennt man sie angepasst. Ist dagegen eine Probe nicht angepasst, so werden beträchtliche Teile des angelegten HF-Signals reflektiert.

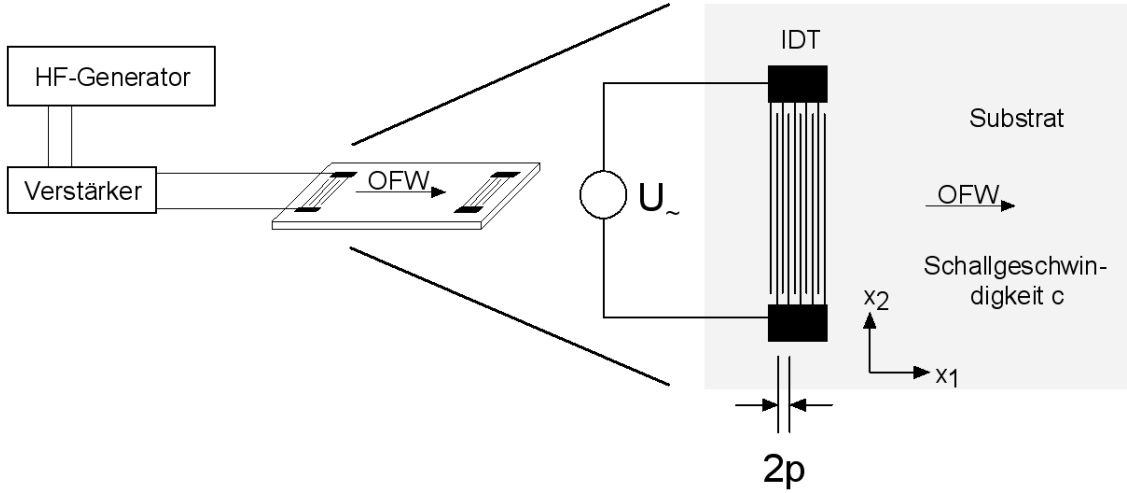


Abbildung 2.6: Aufbau zur Erzeugung einer Oberflächenwelle mittels Ausnutzung des antipiezoelektrischen Effekts

Das reflektierte Signal läuft die Leitung zurück. Bei einem direkten Anschluss des Generators an die Probe kann es dabei zur Beschädigung des Generators kommen, weil dieser die reflektierte Leistung nicht ausreichend herausfiltern kann bzw. bemüht ist, den Pegel seiner Ausgangsleistung zu halten. Anders als ein Generator besteht bei einem HF-Verstärker eine geringere Gefahr, dass er durch große Reflektionsleistungen beschädigt wird. Besteht dennoch die Gefahr einer Beschädigung des Verstärkers, so kann zum Schutz des Verstärkers am Verstärkerausgang ein Dämpfungsglied angeschlossen werden.

Die Breite des Schallwandlers entlang der  $x_2$ -Richtung wird Apertur  $d$  genannt und gibt in guter Näherung auch die Breite des Schallpfads wieder. Die Endlichkeit der Apertur bedingt aber, dass die Intensitätsverteilung einer Oberflächenwelle entlang der  $x_2$ -Richtung nicht invariant ist. Nach dem Huygenschen Prinzip kann jeder Punkt der Fingerstruktur als Ausgangspunkt einer Kreiswelle angesehen werden. Ähnlich wie bei der Beugung von Licht an einem engen Spalt, erhält man bei Messung der Amplitudenverteilung [Alippi76] ein Ergebnis, das man unter Vernachlässigung der Slowness von Fresnel bzw. Fraunhofer Beugung kennt. Die Überlagerung der einzelnen Kreiswellen ergibt ein Interferenzbild und ist zusätzlich vom Abstand  $x_1$  abhängig. Nahe dem Schallwandler gleicht die Amplitudenverteilung einer Oberflächenwelle mit Wellenlänge  $\lambda$  dem Verlauf

$$A \sim \int_{-\frac{d}{2}-x_2}^{\frac{d}{2}-x_2} e^{\frac{i\pi}{x_1\lambda}y^2} dy = C \left[ \sqrt{\frac{2}{x_1\lambda}} \left( \frac{d}{2} - x_2 \right) \right] - C \left[ \sqrt{\frac{2}{x_1\lambda}} \left( -\frac{d}{2} - x_2 \right) \right] +$$

$$i \cdot \left\{ S \left[ \sqrt{\frac{2}{x_1\lambda}} \left( \frac{d}{2} - x_2 \right) \right] - S \left[ \sqrt{\frac{2}{x_1\lambda}} \left( -\frac{d}{2} - x_2 \right) \right] \right\} \quad (2.36)$$

dem Bild der Fresnelbeugung, mit den beiden Fresnel-Integralen  $C(x) = \int_0^x \cos\left(\frac{\pi}{2}\tau^2\right) d\tau$  und  $S(x) = \int_0^x \sin\left(\frac{\pi}{2}\tau^2\right) d\tau$ . Am Rand des Schallpfads ist die Amplitude der Oberflächenwelle überhöht. Im Inneren des Schallpfads ist sie nicht konstant sondern oszilliert. Mit größer werdendem Abstand  $x_1$  geht die Amplitudenverteilung vom Bild der Fresnelbeugung in das Bild der Fraunhoferbeugung mit der  $\frac{\sin x_2}{x_2}$  Verteilung über.

## 2.4 Wechselwirkung OFW – Ladungsträger

Werden Oberflächenwellen auf piezoelektrischen Substraten angeregt und propagieren über die Oberfläche, so ist parallel mit deren Ausbreitung ein elektrisches Feld verbunden. Dieses elektrische Feld kann mit Ladungen, die sich in der Nähe der Oberfläche bzw. der Welle befinden, wechselwirken. Die Ladungen können sich dabei auch in einer Flüssigkeit befinden. Die Wechselwirkung der Ladungen mit dem elektrischen Feld der Oberflächenwelle äußert sich durch eine Änderung der Steifigkeit des Materials, was Auswirkungen auf die Ausbreitungseigenschaften der Welle hat.

Die Wechselwirkung zwischen freien Ladungsträgern und dem elektrischen Feld wird mit einem Relaxationsmodell [Hutson62] beschrieben. Die Ladungsträger versuchen der zeitlichen Periode des Feldes der Oberflächenwelle zu folgen, wodurch sie selbst eine periodische Schwingung vollführen. Es kommt dadurch zu Abschirmströmen, die die Oberflächenwelle beeinflussen. Rechnung zeigt, dass die Oberflächenwelle durch eine zweidimensionale Leitfähigkeit gedämpft werden kann und sich auch die Schallausbreitungsgeschwindigkeit ändert. Die Dämpfung folgt der Gesetzmäßigkeit

$$\Gamma = K_{\text{eff}}^2 k_{\text{OFW}} \frac{\frac{\sigma_A}{\sigma_m}}{1 + \left( \frac{\sigma_A}{\sigma_m} + \frac{Dk_{\text{OFW}}}{v_{\text{Schall}}} \right)^2} \quad (2.37)$$

mit der Flächenleitfähigkeit  $\sigma_A$ , der kritische Flächenleitfähigkeit  $\sigma_m$  (auch nur Leitfähigkeit genannt, einer Materialkonstanten) und der Diffusionskonstanten  $D$  der Ladungsträger. Für die Schallgeschwindigkeitsänderung gilt

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{K_{\text{eff}}^2}{2} \cdot \frac{1 + \left( \frac{Dk_{\text{OFW}}}{v} \right) \left( \frac{Dk_{\text{OFW}}}{v} + \frac{\sigma_A}{\sigma_m} \right)}{1 + \left( \frac{Dk_{\text{OFW}}}{v} + \frac{\sigma_A}{\sigma_m} \right)^2} \quad (2.38)$$

Die Konstante  $\sigma_m$  bestimmt sich zu

$$\sigma_m = \varepsilon_0 (\varepsilon + \varepsilon_{\text{oH}}) v \quad (2.39)$$

mit der dielektrischen Konstanten  $\varepsilon$  des Substrats, der dielektrischen Konstanten  $\varepsilon_{\text{oH}}$  des Materials im oberen Halbraum über der Probe<sup>5</sup> und der Schallgeschwindigkeit des Sub-

---

<sup>5</sup>Für Luft gilt  $\varepsilon_{\text{oH}} = 1$

strats. Im Falle dass die Diffusion klein ist  $\frac{Dk_{QFW}}{v} \ll 1$ , können die Diffusionsterme vernachlässigt werden. Aus Gleichung (2.37) sieht man, dass die Dämpfung  $\Gamma$  bei der kritischen Leitfähigkeit  $\sigma_m$  maximal ist. Die kritische Leitfähigkeit hat eine typische Größenordnung von  $10^{-6}$  S.

## 2.5 Hydrodynamik auf Oberflächenwellenbauteilen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde untersucht, wie sich ein Lab on a chip-System auf Oberflächenwellen-Basis mit Applikationen versehen lässt. In der Analysetechnik werden Stoffe meist in gelöster Form untersucht. Daher wird der Ansatz verfolgt, Flüssigkeiten mit Oberflächenwellen zu bewegen und auch zu analysieren. In diesem Abschnitt soll darauf eingegangen werden, welche Physik mit und in Flüssigkeiten bei Verwendung eines Oberflächenwellenbauteils zum Verständnis benötigt wird.

Der Fluss eines fluiden Mediums zeigt verschiedene Erscheinungsformen. Ein Gewässer kann einer Stelle still vor sich hinfließen, wobei die Strömung keine Zeitabhängigkeit zeigt, während es an einer anderen Stelle völlig chaotisch erscheint und eine Voraussage des Zeitverhaltens der Strömung unmöglich ist. Das Strömen eines Gewässers oder das Verhalten einer Flüssigkeit auf einem Oberflächenwellenchip wird mit der Navier-Stokes-Gleichung für inkompressible Flüssigkeiten durch

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt} = -\nabla \left( \Phi + \frac{p}{\varrho} \right) + \frac{\eta}{\varrho} \Delta \mathbf{v} \quad (2.40)$$

beschrieben. Die Größen  $\mathbf{v}$  stehen für den Geschwindigkeitsvektor,  $\Phi$  für das Potential der Strömung,  $\varrho$  für die Dichte der Flüssigkeit,  $p$  für den Druck und  $\eta$  für die Viskosität der Flüssigkeit.  $\frac{d\mathbf{v}}{dt}$  beschreibt die Beschleunigung eines Massenelements im Potential  $\Phi$  des konservativen Kraftfelds, das die Strömung verursacht bei einem herrschenden Druckgradienten  $\nabla p$ . Der Term  $\frac{\eta}{\varrho} \Delta \mathbf{v}$  berücksichtigt die innere Reibung der Flüssigkeit.

### 2.5.1 Wechselwirkung von Festkörperschwingungen mit Flüssigkeiten

Die Schwingungen eines Festkörpers können sich in einer Flüssigkeit fortsetzen, die sich in Kontakt zur Oberfläche des Festkörpers befindet. Dies kann mit dem Formalismus der Kontinuumstheorie beschrieben werden [Campbell70]. Da Flüssigkeiten ein isotropes Medium darstellen, vereinfacht sich das Elastizitätsmodul  $c$  und es gibt nur noch zwei unabhängige Konstanten. Mit den sogenannten Lamé-Konstanten  $\lambda$  und  $\mu$  gilt nun

$$c_{ijkl} = c_{ijkl}(\lambda, \mu) = \lambda \delta_{ij} \delta_{kl} + \mu (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}) \quad . \quad (2.41)$$

Dabei stellt  $\mu$  das Schermodul dar und über das Kompressionsmodul

$$k = \frac{1}{\kappa} = \lambda + \frac{2}{3}\mu \quad (2.42)$$

mit der Kompressibilität  $\kappa$  lässt sich  $\lambda$  darstellen. Die Lamé-Konstanten können auch über die Beziehungen

$$\lambda = \frac{\nu E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} \quad (2.43)$$

$$\text{und } \mu = \frac{E}{2(1 + \nu)} = G \quad (2.44)$$

mit den mechanischen Größen Elastizitätsmodul  $E$ , Schubmodul  $G$  und der Querkontraktionszahl  $\nu$  dargestellt werden.

Statt der Bewegungsgleichungen (2.11) und (2.12) müssen nun nur noch die Gleichungen

$$\varrho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} = (\lambda + \mu) \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_i} + \mu \cdot \nabla^2 u_j \quad (2.45)$$

$$\nabla^2 \varphi = 0 \quad (2.46)$$

betrachtet werden. Zusätzlich gilt für Flüssigkeiten  $\mu = 0$ , was bedeutet, dass fluide Medien bei Scherung wegfließen. Formell bedeutet dies eine Vereinfachung der Gleichung (2.45) zu

$$\varrho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} = \lambda \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_i} \quad (2.47)$$

Da Scherwellen sich nicht in Flüssigkeiten ausbreiten ( $\mu = 0$ ), sind Scherwellen besonders für Sensorzwecke geeignet, weil sie durch Flüssigkeiten nicht gedämpft werden. Die Schallgeschwindigkeit beträgt dabei

$$v = \sqrt{\frac{\lambda}{\varrho}} = \frac{1}{\sqrt{\kappa \varrho}} \quad (2.48)$$

Im Gegensatz zu Scherwellen, koppeln Rayleighwellen in Flüssigkeiten ein [Shiokawa88, Rathgeber00]. Dies macht sie besonders für die Aktorik geeignet.

### 2.5.2 Modell des SAW streaming

Es ist bekannt, dass Schallausbreitung in fluiden Medien mit einem Materiefluss verbunden ist [Landau63]. Bringt man eine Flüssigkeit in Kontakt mit einem Oberflächenwellenbauteil, so kann mit einer Oberflächenwelle die Flüssigkeit beeinflusst werden. Durch die Oberflächenwelle wird in der Flüssigkeit eine Strömung verursacht, das sog. SAW streaming. Das Phänomen des SAW streaming wird mit dem Modell des acoustic streaming [Nyborg65] beschrieben. Dazu geht man von der Navier-Stokes-Gleichung (2.40)

$$\varrho \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{v}$$

aus. Bei Anwendung der Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial \varrho}{\partial t} + \operatorname{div}(\varrho \cdot \mathbf{v}) = 0 \quad (2.49)$$

erhält man schließlich bei Vernachlässigung der Viskosität

$$\frac{\partial(\varrho \mathbf{v})}{\partial t} + \varrho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} + \mathbf{v} \nabla \cdot \varrho \mathbf{v} = \mathbf{f}_0 - \mathbf{f}_1 \quad , \quad (2.50)$$

wobei gilt

$$\mathbf{f}_0 = \frac{\partial(\varrho \mathbf{v})}{\partial t} \quad (2.51)$$

$$\text{und } -\mathbf{f}_1 = \varrho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} + \mathbf{v} \nabla \cdot \varrho \mathbf{v} \quad . \quad (2.52)$$

Im weiteren ist der genaue zeitliche Verlauf weniger von Interesse, sondern vielmehr das zeitliche Mittel dieser Kräfte. Nimmt man an, dass die Schallwelle ein sinusförmiges Zeitverhalten hat, wird das zeitliche Mittel von  $\mathbf{f}_0$  zu 0, so dass nur noch

$$- \langle \mathbf{f}_1 \rangle = \langle \varrho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} + \mathbf{v} \nabla \cdot \varrho \mathbf{v} \rangle \quad (2.53)$$

betrachtet werden muss. Wenn eine Flüssigkeit in Kontakt mit dem Substrat des Oberflächenwellenbauteils ist, koppelt die Oberflächenwelle als eine longitudinale Schallwelle in das Wasser ein. Dabei pflanzt sich die Schallwelle unter dem sogenannten Rayleigh-Winkel  $\Theta_R$  zur Flächennormalen fort. Dieser berechnet sich aus den Schallgeschwindigkeiten  $v_R$  des Substrat und  $v_{Fl}$  der Flüssigkeit.

$$\Theta_R = \arcsin \frac{v_{Fl}}{v_R} \quad (2.54)$$

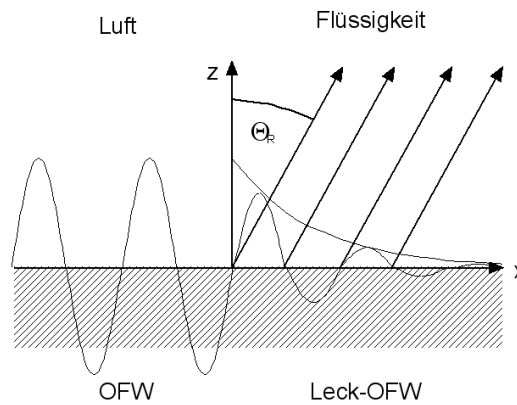


Abbildung 2.7: Einkoppeln der Oberflächenwelle in eine Flüssigkeit



Für die Kombination Wasser und Lithiumniobat hat der Rayleigh-Winkel den Wert  $\Theta_R = 22^\circ$ . Wenn sich eine Flüssigkeit auf dem Substrat befindet, dann wird die ankommende Oberflächenwelle nicht augenblicklich beim Auftreffen auf die Flüssigkeit absorbiert, sondern läuft unter der Flüssigkeit als exponentiell gedämpfte Welle weiter, man spricht dann von einer Leck-Rayleigh-Welle. Hatte die einfallende Oberflächenwelle zu Anfang den rein reellen Wellenvektor  $k_R$ , dann hat die Leck-Rayleigh-Welle den komplexen Wellenvektor  $k_L$ .

Um die wirkende Kraft abschätzen zu können, betrachtet man als erstes den Ort eines Volumenelements der Flüssigkeit in Abhängigkeit von Ort und Zeit:

$$u_x = Ae^{i\omega t} e^{ik_L x} e^{-\alpha k_L z} \quad (2.55)$$

$$\text{und } u_z = -i\alpha A e^{i\omega t} e^{ik_L x} e^{-\alpha k_L z} \quad (2.56)$$

mit

$$\alpha = \sqrt{1 - \left(\frac{v_R}{v_w}\right)^2} \quad (2.57)$$

Die Auslenkungen der Volumenelemente werden nach der Zeit abgeleitet  $\mathbf{v} = \frac{d\mathbf{u}}{dt}$  und die so erhaltenen Geschwindigkeiten setzt man in Gl. (2.53) ein und erhält

$$\langle f_x \rangle = -\varrho (1 + \alpha_l^2) A^2 \omega^2 k_i e^{2(k_i x + \alpha_l k_i z)} \quad (2.58)$$

$$\text{und } \langle f_z \rangle = -\varrho (1 + \alpha_l^2) A^2 \omega^2 k_i \alpha_l e^{2(k_i x + \alpha_l k_i z)} \quad (2.59)$$

mit den Substitutionen  $\alpha_l = i \cdot \alpha$  und  $k_L = k_r + ik_i$ . Fasst man nun die beiden Kraftkomponenten nach

$$\langle f_{ls} \rangle = \sqrt{\langle f_x \rangle^2 + \langle f_z \rangle^2} \quad (2.60)$$

zusammen, so bekommt man als Betrag der Kraft des SAW streaming das Ergebnis

$$\langle f_{ls} \rangle = -\varrho (1 + \alpha_l^2)^{\frac{3}{2}} A^2 \omega^2 k_i e^{2(k_i x + \alpha_l k_i z)} \quad (2.61)$$

Die Kraft des SAW streaming ist dabei natürlich parallel zur Ausbreitungsrichtung der longitudinalen Schallwelle in der Flüssigkeit. Als Unbekannte bleibt der Wellenvektor  $k_L$ , der sich aber nach der Methode von Campbell und Jones [Campbell70] aus  $k_R$  berechnen lässt. In einer Beispielrechnung von S. Shiokawa ergibt sich auf 128°-rot LiNbO<sub>3</sub> bei 50 MHz  $v_L = (3931 + 67,7i) \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Zusammengefasst bedeutet dies, dass die Oberflächenwelle in die Flüssigkeit als eine longitudinale Schallwelle einkoppelt und damit einen Materiefluss induziert, der sich als Strömung bemerkbar macht.

Eine anschauliche Erklärung, warum eine periodische akustische Welle eine vorwärts gerichtete Bewegung erzeugt, kann durch die Energiedissipation der Schallintensität in der

Flüssigkeit gegeben werden [Bradley96]. Bewegt sich ein Massenelement  $dm$  in der Nähe der Schallquelle von dieser weg, so gelangt es in Bereiche geringerer Schallintensität. Nach einer halben Periode der Schallschwingung, wenn die Umkehr der Bewegungsrichtung stattfindet, erfährt das Massenelement eine geringere Rückstellkraft. Das Massenelement wird nicht mehr zu seiner ursprünglichen Position zurückgezogen und hat somit seinen Ort über die Zeit gemittelt in Richtung von der Schallquelle weg verändert. Eine vorwärts gerichtet Bewegung entsteht.

### 2.5.3 Akustisch getriebene Fluidik

Befindet sich ein Tropfen im Schallpfad eines Oberflächenwellenbauteils (s. Abb. 2.8), wechselwirken Oberflächenwelle und Flüssigkeit des Tropfens nach dem Prinzip des acoustic streaming. Dies macht man sich zu nutze, um Flüssigkeiten mit einer akustischen Oberflächenwelle zu bewegen [Strobl01], wie es auch in der vorliegenden Arbeit geschah.

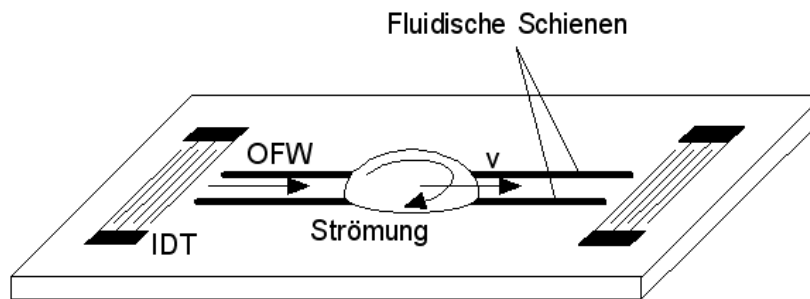


Abbildung 2.8: Skizze des Aufbaus um mit akustischen Oberflächenwellen Flüssigkeiten zu mischen bzw. Tropfen zu bewegen. Die Fluidischen Schienen sorgen dafür, dass die Richtung der Bewegung des Tropfens definiert ist.

Eine Oberflächenwelle erzeugt in dem Tropfen ab einer bestimmten Leistung (s. Tab. 2.4) eine Strömung (s. Abb. 2.9). Diese Strömung durchmischt den Tropfen und ist dominant gegenüber Diffusion. Mit zunehmender Leistung der Oberflächenwelle und damit einer ebenfalls stärkeren Strömung, wird die Tropfenoberfläche verformt und ab einer bestimmten Schallleistung wird die Strömung so stark, dass sie fähig ist den Tropfenrand und den ganzen Tropfen zu bewegen. Es kommt zu einer Schwerpunktsbewegung des Tropfens.

$P_{\text{HF}}$ in dBm	Beobachtung
-15 dBm	Einsetzen einer Strömung; Probeteilchen im Tropfen werden jetzt von der Strömung mitgerissen (s. dazu Abb. 2.10)
-1 dBm	Tropfenoberfläche beginnt sich zu verformen; erkennbar an den Veränderungen der Lichtreflektionen auf der Tropfenoberfläche (s. dazu Abb. 2.12)
18 dBm	Tropfenschieben setzt ein (s. dazu Abb. 2.11)
28 dBm	Tropfen wird beim Einschalten der Oberflächenwelle zerhackt und es fliegen mehrere Teile des Tropfens durch das Sichtfeld

Tabelle 2.4: Übersicht über die experimentellen Befunde bei Untersuchung des Verhaltens einer Flüssigkeit unter Einfluss einer Oberflächenwelle. Die Art der Beobachtung ist von der Stärke des HF-Signals, das am Schallwandler anliegt abhängig. Die Leistungsangaben sind mit einem Fehler von  $\pm 2$  dBm behaftet.

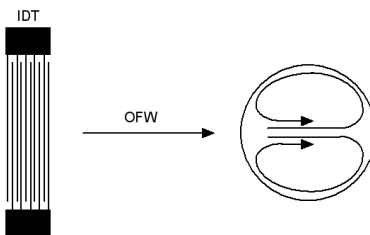


Abbildung 2.9: Aussehen einer akustisch getriebenen Strömung in einem Tropfen in Draufsicht.

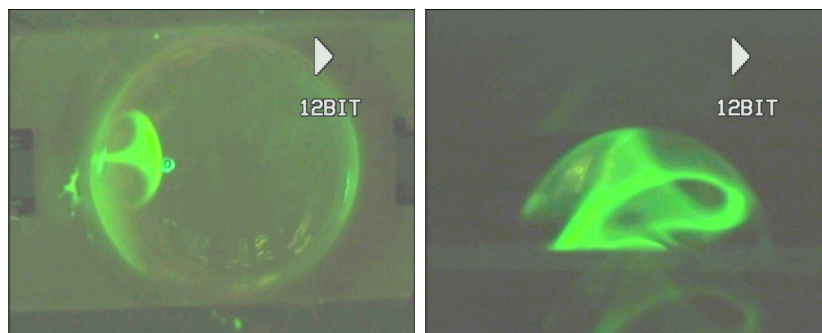


Abbildung 2.10: *links*: Trifft eine Oberflächenwelle einen Tropfen, verursacht sie eine Strömung. In Draufsicht sieht man zwei Wirbel, die von der von links kommenden Welle verursacht werden. *rechts*: Seitenansicht der akustisch induzierten Strömung. Die Welle kommt von links. In beiden Bildern wurde zur besseren Verdeutlichung der Strömung dem Tropfen ein fluoreszierender Farbstoff hinzugesetzt und mit dem Wasser vermischt. Das linke Bild ist aus dem Film [mischen\\_oben\\_341.mpg](#), das rechte Bild aus [schlieren.mpg](#)

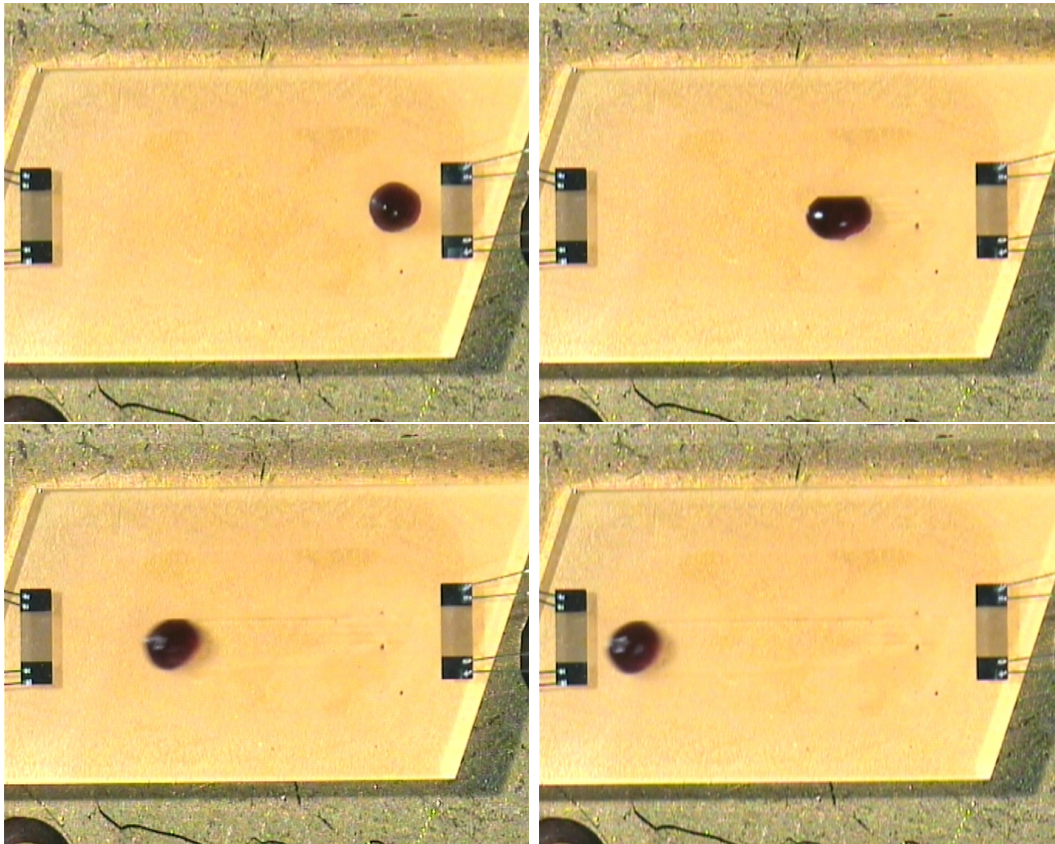


Abbildung 2.11: Transport eines Tropfens durch eine Oberflächenwelle. Der rechte Schallwandler erzeugt eine Oberflächenwelle, die nach links läuft. Die Welle bewegt den Tropfen nach links. Zur besseren Darstellung wurde der Tropfen mit Bromphenolblau gefärbt. Als Substrat wurde Lithiumniobat verwendet. Die Oberfläche des Chips war mit Fluidischen Schienen strukturiert. Zu diesen Bildern s. auch den Film [blauerTropfen.lauf.mpg](#)

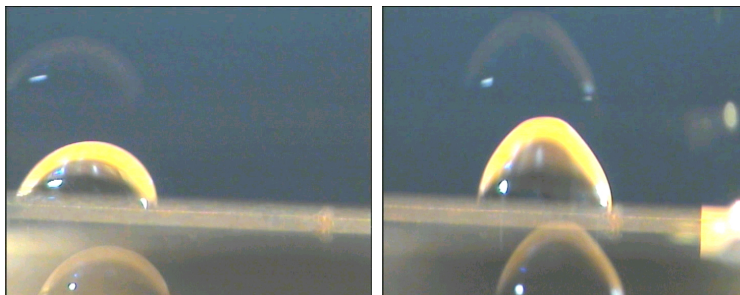


Abbildung 2.12: Unter Einfluss einer ausreichend starken Oberflächenwelle verformt sich ein Tropfen. Man sieht in Seitenansicht, die Verformung eines Tropfens, der durch eine Oberflächenwelle bewegt wird (rechtes Bild). Die Oberflächenwellen kommt links und bewegt den Tropfen nach rechts. Durch die Verformung sieht der Tropfen aus, als ob er nach oben gezogen wird. Die Bilder stammen aus dem Film [verform.mpg](#)

Die typische Größenordnung mit der diese Versuche durchgeführt werden, liegen bei etwa 100  $\mu\text{m}$ . In diesem Größenbereich haben Strömungen fast ausnahmslos einen laminaren Charakter. Dies wird durch die Reynoldszahl

$$Re = \frac{v \varrho b}{\eta} \quad (2.62)$$

zum Ausdruck gebracht. In die Reynoldszahl gehen die Strömungsgeschwindigkeit  $v$ , die Dichte  $\varrho$  des fluiden Mediums, seine Viskosität  $\eta$  und die typische Größenordnung  $b$  des Systems ein. Sie gibt das Verhältnis der Trägheitskräfte auf eine Massenelement  $dm$  des fluiden Mediums zu den Reibungskräften wiedergeben. Liegt die Reynoldszahl unter 2000 spricht man von einer laminaren Strömung (es treten keine zeitlich nicht determinierte Wirbel auf), andernfalls von einer turbulenten Strömung. Da die Ausdehnung eines akustisch getriebenen Fluidiksystem auf Oberflächenwellenbasis stets klein ist, ist auch der Charakter der Strömungen in einem Tropfen auf einem Oberflächenwellenbauteil stets laminar. Das bedeutet, dass Mischvorgänge im Tropfen ineffizient sind. Im Falle eines oberflächenwellengetriebenen Systems begegnet man diesem Phänomen mit einer frequenzabhängigen Steuerung des Mischens bzw. Strömungsbildes, wodurch ein quasichaotisches Mischen erreicht wird. Dabei bestimmt die Frequenz der Oberflächenwelle das Aussehen des Stromlinienbildes im Tropfen.

Besondere Aufmerksamkeit verdient die Tatsache, dass die Tropfen ohne begrenzendes Gefäß transportiert werden. Die typische Größenordnung eines Chips für eine akustisch getriebene Fluidik liegt im Millimetermaßstab. Die Mengen der Flüssigkeiten liegen im Bereich von 1  $\mu\text{l}$  bis hinunter zu 10  $\text{pl}$ <sup>6</sup>. Die Ausdehnung der Tropfen liegt unter 1 mm. Bei dieser Größenordnung und darunter wird ein Tropfen nicht mehr von der Schwerkraft allein dominiert sondern fast gänzlich von der Oberflächenspannung. Die Schwerkraft bedingt in einer Flüssigkeit der Dichte  $\rho$  bei Fallbeschleunigung  $g$  in der Tiefe  $h$  den hydrostatischen Druck

$$p = g \rho h \quad . \quad (2.63)$$

In einem Tropfen mit Radius  $r$  aus einer Flüssigkeit mit Oberflächenspannung  $\sigma$ , verursacht die Kraft der Oberflächenspannung einen Druck

$$p = \frac{2\sigma}{r} \quad . \quad (2.64)$$

Für einen Wassertropfen kleiner als  $r < \sqrt{2\sigma (g\rho)^{-1}} = 3,9 \text{ mm}$  übersteigt der Druck durch die Oberflächenspannung den hydrostatischen Druck. Tropfen mit weniger als 1  $\mu\text{l}$  Volumen werden fast nur durch die Kraft der Oberflächenspannung bestimmt und geformt. Die Oberflächenform kann als kugelförmig betrachtet werden, weil der Einfluss der Schwerkraft klein gegenüber der Oberflächenspannung ist. Die Oberflächenspannung formt

---

<sup>6</sup>Mit der hier beschriebenen Technik konnte auch ein Dispenser realisiert werden der 250 fl Tropfen erzeugt.



die Oberfläche zur Kugelform und begrenzt ihn zugleich, anstatt dass der Tropfen auseinander fließt. Dies begründet auch warum in diesem Größenbereich auf Gefäße für den Transport oder eine kurzzeitige Aufbewahrung verzichtet werden kann. Es ergibt sich damit die Möglichkeit mit einer offenen Geometrie zu arbeiten. Der Zugang zum System und dem Tropfen ist jederzeit möglich, bedingt durch die Kleinheit des Aufbaus. Zusätzlich kann der Tropfen näherungsweise als Halbkugel betrachtet werden.

## 2.6 Leitfähigkeit eines Elektrolyten

Biologisch wirksame Moleküle werden meist in salziger Umgebung untersucht. Da derartige Lösungen leitfähig sind, wurde in der vorgelegten Arbeit die Wirkung eines Elektrolyten auf die Oberflächenwelle untersucht. Um im Laboralltag mit Fluidiksystemen auf Oberflächenwellenbasis arbeiten zu können, müssen das System auch mit Elektrolyten umgehen können.

Die elektrische Leitfähigkeit eines Elektrolyten beruht darauf, dass Ionen sich durch ein Lösemittel bewegen können, ähnlich wie Elektronen durch das Kristallgitter eines Metalls. Daher scheint es sinnvoll, die Leitfähigkeit eines Elektrolyten wie bei Metallen durch die Beweglichkeit zu definieren. Dabei sei zur Vereinfachung angenommen, dass sich der Elektrolyt während des Stromflusses nicht zersetzt. Für Metalle lautet die Gesetzmäßigkeit

$$\sigma = en\mu_e \quad (2.65)$$

für Elektrolyte schreibt man dieses Gesetz aufgetrennt in die einzelnen Beiträge der Kationen und Anionen in der Form

$$\begin{aligned} \sigma &= eN_A \cdot (c_- z_- \mu_- + c_+ z_+ \mu_+) \\ &= F \cdot (c_- z_- \mu_- + c_+ z_+ \mu_+) \\ &= e \cdot (n_- z_- \mu_- + n_+ z_+ \mu_+) \end{aligned} \quad (2.66)$$

mit der Beweglichkeit  $\mu_{\pm}$ , Konzentration<sup>7</sup>  $c_{\pm}$ , Wertigkeit  $z_{\pm}$  der Kationen bzw. Anionen, Elementarladung  $e$ , Avogadrokonstante  $N_A$ , Faradaykonstante  $F$  und der Teilchendichte  $n_{\pm}$ .

Führt man ein Experiment zur Bestätigung dieses Gesetzes für Elektrolyten durch, so erhält man im Allgemeinen keine Bestätigung dafür. Vielmehr zeigt sich, dass die Beweglichkeit eine Funktion der Konzentration ist und die Leitfähigkeit in der Form

$$\sigma = en\mu(n) = eN_A c \mu(c) \quad (2.67)$$

geschrieben werden muss. Verursacht wird dies durch die Gegenionenwolke. Die Ionen eines Salzes richten Dipole oder andere ionische Bestandteile des Lösungsmittels durch

---

<sup>7</sup>Die Konzentration wird meist in Einheiten von  $1 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$  angegeben, man spricht dann auch von molaren Lösungen. Dabei gilt  $1 \frac{\text{mol}}{\text{l}} = 1000 \frac{\text{mol}}{\text{m}^3}$

ihre Ladung aus. Dadurch hängt der scheinbare Ionenradius von der Konzentration der Ionen ab und erscheint vergrößert. Die Konsequenz ist, dass das Ion nun zusammen mit der Gegenionenwolke durch das Lösungsmittel wandern muss, was sich in einer geringeren Beweglichkeit äußert.

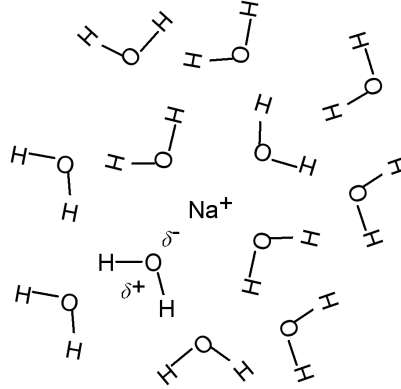


Abbildung 2.13: Ein in Wasser gelöstes Natriumion richtet die Dipolmomente der Wassermoleküle aus. Die Wassermoleküle umgeben das Natriumion wie eine Wolke.

Im Falle von Ionen in wässriger Lösung spricht man auch von Hydratisierung. Wegen der nicht vernachlässigbaren Größe des Ions mit Gegenionenwolke hängt die Beweglichkeit nun von der Ionenkonzentration ab. Um dies mathematisch zu beschreiben wird die Äquivalentleitfähigkeit

$$\Lambda = \frac{\sigma}{c} \quad (2.68)$$

eingeführt. Durch das Gesetz von Kohlrausch wird diese für starke Elektrolyte im Bereich kleiner Konzentrationen und niedriger Frequenzen durch die Gesetzmäßigkeit

$$\Lambda = \Lambda_0 - (P + Q\Lambda_0 \cdot \text{Re}\chi) \quad \text{mit} \quad \Lambda_0 = \lim_{c \rightarrow 0} \frac{\sigma(c)}{c} \quad (2.69)$$

wiedergegeben. Der Begriff „starke Elektrolyte“ beschreibt Salze, die bei jeder Konzentration vollständig dissoziieren z.B. Kochsalz NaCl. Andernfalls spricht man von „schwachen Elektrolyten“ z.B. Essigsäure. Der Term  $(P + Q\Lambda_0 \cdot \text{Re}\chi)$  wird meist zu einer eigenen Konstante  $K \cdot \sqrt{c}$  zusammengefasst und man hat dann die Gl.(2.69) in der Form, wie sie Kohlrausch empirisch fand. Dieses Gesetz wurde später auch theoretisch belegt. Dabei wurden die Größen P als die Relaxationskraft und Q als die elektrophoretische Kraft eingeführt. Diese können auf elektro- und thermodynamische Größen zurückgeführt werden [Falkenhagen71]:

$$P = \frac{F^2}{6\pi\eta N_A} \cdot (|z_+| + |z_-|) \cdot \frac{1}{r_D} \quad (2.70)$$

$$Q = \frac{|z_+ z_-| e^2}{12\pi\epsilon\epsilon_0 k_B T} \cdot \frac{q}{1 + \sqrt{q}} \cdot \frac{1}{r_D} \quad (2.71)$$

mit dem Debyeradius

$$r_D = \sqrt{\frac{\varepsilon \varepsilon_0 k_B T}{e^2 N_A \sum_i z_i^2 c_i}} \quad (2.72)$$

und der Größe  $q$

$$q = \frac{|z_+ z_-|}{|z_+| + |z_-|} \cdot \frac{\lambda_+ + \lambda_-}{|z_-| \lambda_+ + |z_+| \lambda_-} \quad (2.73)$$

mit den Ionenleitfähigkeiten  $\lambda_{\pm}$ , der Viskosität  $\eta$  und der dielektrischen Konstanten  $\varepsilon$  des Lösungsmittels, der elektrischen Feldkonstanten des Vakuums  $\varepsilon_0$  sowie der Temperatur  $T$  und der Boltzmannkonstanten  $k_B$ . Mit dem Term  $\text{Re}\chi$  beschreibt man die Dispersion der Äquivalentleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Frequenz eines Wechselstroms. Mit  $\text{Re}\chi = 1$  beschreibt man die Äquivalentleitfähigkeit für Gleichströme. Will man Wechselströme der Frequenz  $f$  betrachten, so wird  $\text{Re}\chi$  eine Funktion der Frequenz

$$\text{Re}\chi = \frac{1 + \sqrt{q}}{\sqrt{q} \cdot \left[ \left(1 - \frac{1}{q}\right)^2 + (2\pi f \Theta)^2 \right]} \cdot \left[ \left(1 - \frac{1}{q}\right) \left(\bar{R} - \frac{1}{\sqrt{q}}\right) + 2\pi f \Theta \bar{Q} \right] \quad (2.74)$$

mit

$$\bar{R} = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \sqrt{\sqrt{1 + (2\pi f \Theta)^2} + 1} \quad \text{und} \quad \bar{Q} = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \sqrt{\sqrt{1 + (2\pi f \Theta)^2} - 1}$$

und der Relaxationszeit

$$\Theta = \frac{\varepsilon \varepsilon_0 k_B T}{c N_A e^2 (D_+ + D_-)} \quad (2.75)$$

mit den Diffusionskonstanten  $D_{\pm}$ . Diese Zeit ist gleichbedeutend mit dem Zerfließen einer Ladungsansammlung in einer leitfähigen Umgebung und der Relaxationszeit der Gegenionenwolke. Die Diffusionskonstanten lassen sich mit der Einstein-Beziehung mit der Beweglichkeit  $\mu_{\pm}$  verknüpfen, es gilt

$$\mu_{\pm} = \frac{e D_{\pm}}{k_B T} \quad (2.76)$$

Dieser Formalismus beschreibt die Leitfähigkeit für starke Elektrolyte im Bereich  $c < 0,1 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$ . Will man die Äquivalentleitfähigkeit auch im Bereich hoher Konzentration  $c < 1 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$  beschreiben, so muss man sich wieder auf die Gleichstromleitfähigkeit beschränken. Zur Beschreibung dieses Bereichs muss man berücksichtigen, dass sich die Ionen in der Gegenwolke nur bis zu einem Abstand  $a$  dem Zentralion nähern können. Dieser Minimalabstand wird auch  $a$ -Parameter genannt.

Die Konsequenz ist, dass die Größen  $P$  und  $Q$  modifiziert werden müssen. Es gilt dann



Ionenbeweglichkeit in $10^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{Vs}}$			
Kation		Anion	
$\text{H}_3\text{O}^+$	33	$\text{OH}^-$	18,2
$\text{Na}^+$	4,6	$\text{Cl}^-$	6,85
$\text{K}^+$	6,75	$\text{NO}_3^-$	6,5
$\text{Mg}^{2+}$	4,9	$\text{CO}_3^{2-}$	6,2
$\text{Ca}^{2+}$	5,3	$\text{SO}_4^{2-}$	7,1
$\text{NH}_4^+$	6,7	$\text{HCO}_3^-$	3,9

Tabelle 2.5: Beweglichkeit einiger Ionen in wässriger Lösung bei 18°C

Elektrolyt	a-Parameter in $10^{-10} \text{ m}$
NaCl	4,02
KCl	3,76
$\text{K}_2\text{SO}_4$	2,69
$\text{MgSO}_4$	3,35

Tabelle 2.6: Die a-Parameter verschiedener Salze in wässriger Lösung

$$\tilde{P} = \frac{1}{1 + \frac{a}{r_D}} \cdot P \quad (2.77)$$

$$\tilde{Q} = \frac{1}{1 - \sqrt{q}} \cdot \frac{1}{\left(1 + \frac{a}{r_D}\right)^{\frac{a}{r_D}}} \cdot \left(e^{(1-\sqrt{q})\frac{a}{r_D}} - 1\right) \cdot Q \quad (2.78)$$

Der Bereich noch größerer Konzentrationen  $c > 1 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$  ist derzeit mathematisch nicht beschrieben und weiterhin Gegenstand der Forschung. Es gibt Theorien für diesen Bereich, die aber Vereinfachungen voraussetzen, wie z.B. symmetrische Elektrolyte ( $|z_+| = |z_-|$ ) oder kleine Ionen, was  $\text{Na}^+$  oder  $\text{Cl}^-$  bedeutet und große Ionen aus Molekülen wie  $\text{SO}_4^{2-}$  ausschließt.

Für schwache Elektrolyte muss man das Massenwirkungsgesetz berücksichtigen. Ein binärer Elektrolyt dissoziiert nicht vollständig. Sein Dissoziationsgrad  $\alpha$  hängt von der Konzentration ab. Für die Reaktionsgleichung



lautet das Massenwirkungsgesetz

$$K = \frac{c_K c_A}{c_S} \quad (2.79)$$

mit den Konzentrationen des Anions  $c_A$ , des Kathions  $c_K$  und des Salzes  $c_S$  und der Gleichgewichtskonstanten  $K$ . Es sind bei einem 1:1-Elektrolyten stets gleich viele Ka-

thionen wie Anionen gelöst  $c_K = c_A$ . Die Gesamtkonzentration  $c$  des gelösten Salzes ist  $c = c_S + \frac{1}{2}(c_K + c_A)$ . Für den Dissoziationsgrad ergibt sich

$$\alpha = \frac{c_K}{c} = \frac{\Lambda}{\Lambda_0} \quad . \quad (2.80)$$

Durch lösen einer quadratischen Gleichung<sup>8</sup> erhält man

$$\Lambda = \frac{\Lambda_0 K}{2c} \left( \sqrt{1 + \frac{4c}{K}} - 1 \right) \quad . \quad (2.81)$$

Das ist das Ostwaldsche Verdünnungsgesetz zur Abhängigkeit der Äquivalentleitfähigkeit von der Konzentration eines schwachen Elektrolyten.

## 2.7 Elektrophorese

Suspendiert man ein geladenes Teilchen in eine nichtleitende Flüssigkeit und legt innerhalb dieser Flüssigkeit ein elektrisches Feld an, dann bewegt sich das Teilchen entlang des elektrischen Feldes. Man spricht von einer elektrophoretischen Bewegung des Teilchens [Viovy00]. Eine Anwendung dazu ist die Gelelektrophorese, die bei Durchführung der Versuche zu dieser Arbeit auch für ein akustisch getriebenes System verwendet wurde.

### 2.7.1 Elektrophoretische Bewegung

Das Anlegen einer elektrischen Spannung an eine nichtleitende Flüssigkeit veranlasst darin befindliche elektrisch geladene Teilchen sich entlang des elektrischen Feldes zu bewegen. Betrachtet man ein Teilchen mit der Ladung  $q$  in einer Flüssigkeit, über der in der Länge  $d$  eine Potentialdifferenz  $U$  abfällt, dann herrscht in der Flüssigkeit bei Stromfluss<sup>9</sup> das elektrische Feld

$$E = \frac{U}{d} \quad . \quad (2.82)$$

Das Teilchen läuft mit der Geschwindigkeit  $v$  entlang des elektrischen Feldes mit der elektrophoretischen Beweglichkeit

$$\mu = \frac{v}{E} \quad (2.83)$$

durch die Flüssigkeit. Dabei stellt die Flüssigkeit einen Reibungswiderstand dar. Das Teilchen erfährt eine Reibungskraft  $F$ , die mit dem Stokes-Ansatz beschrieben wird:

$$F = 6\pi\eta v R \quad (2.84)$$

<sup>8</sup>Die Zweideutigkeit der Lösung verschwindet, da das negative Vorzeichen vor der Wurzel einen physikalisch unsinnigen Zusammenhang ergibt.

<sup>9</sup>Der Stromfluss bewirkt die Aufhebung einer entstehenden Polarisation, daher kann die Betrachtung mit  $\varepsilon = 1$  durchgeführt werden.

Darin ist  $\eta$  die Viskosität des Lösungsmittels und  $R$  der Radius des Teilchens. Im stationären Fall  $v=\text{konst.}$  heben sich die Reibungskraft und die elektrische Kraft

$$F = qE \quad (2.85)$$

auf das Teilchen gerade auf. Fasst man die letzten vier Gleichungen zusammen, ergibt sich eine Beziehung zwischen der Molekülgröße und der Beweglichkeit.

$$R = \frac{q}{6\pi\eta\mu} = \frac{qU}{6\pi\eta vd} \quad (2.86)$$

### 2.7.2 Eigenschaften und Begriffe der DNA

Im Rahmen dieser Arbeit, insbesondere bei Versuchen zur Gelelektrophorese, wurde u.a. mit dem Trägermolekül der Erbgutinformation, der DNA, gearbeitet. Bei diesen Versuchen wurde DNA aufgrund ihrer langenabhängigen Beweglichkeit in einem Gel getrennt. Da die Gelelektrophorese aus dem Bereich der Bioanalytik stammt, finden dort eine Vielzahl von Fachbegriffen rund um die DNA ihre Verwendung. Anhand der Erklärung des Aufbaus der DNA sollen in diesem Abschnitt Begriffe aus dem Bereich der Molekularbiologie eingeführt werden. Die Beweglichkeit der DNA und die Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Länge sind durch den molekularen Aufbau der DNA begründet, worauf im folgenden ebenfalls kurz eingegangen wird.

Die DNA, Desoxyribonukleinsäure, besteht aus 4 Derivaten von Stickstoffbasen, Adenin, Cytosin, Guanin und Thymin, sowie aus Phosphatresten und dem Zucker Desoxyribose. Neben der DNA gibt es auch noch die RNA, Ribonukleinsäure. Diese ist der DNA im Aufbau sehr ähnlich. Enthält aber statt des Thymins Uracil und statt des Zuckers Desoxyribose die Ribose.

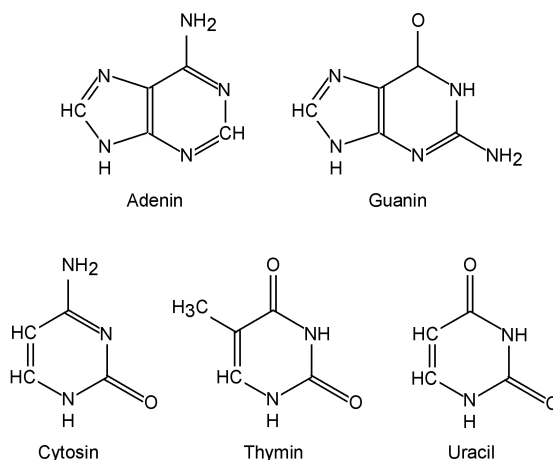


Abbildung 2.14: Strukturformeln der Stickstoffbasen; Adenin und Guanin sind Derivate des Purin und werden auch werden als Purinbasen zusammengefasst. Cytosin, Thymin und Uracil dagegen sind Derivate des Pyrimidin und als Pyrimidinbasen zusammengefasst.

Die einzelnen Basen sind in der DNA über den Zucker Desoxyribose und Phosphatreste mit einander verbunden. Die Zucker- und Phosphatreste bilden das sogenannte Rückgrat der DNA. Im Rückgrat der RNA findet man den Zucker Ribose. Die einzelnen Bestandteile binden durch Veresterung über Sauerstoffbrücken miteinander. Die Verbindung einer Base mit einem Zucker nennt man Nukleosid. Bindet an das Kohlenstoffatom der 5'-Stellung ein Phosphatrest erhält man ein Nukleotid. Einzelne Nukleotide können abermals durch Veresterung untereinander binden. Das Phosphat eines zweiten Nukleotids bindet dann an das Kohlenstoffatom der 3'-Stellung. Dieser Vorgang ist auch mehrmals hintereinander möglich. Man spricht dann je nach Anzahl der Nukleotide von einer Nukleotidsequenz, Oligo oder einzelsträngiger DNA (ssDNA). An eine solche Sequenz kann eine komplementäre Sequenz mittels Wasserstoffbrückenbindungen binden. Dabei gehen nur Adenin und Thymin sowie Cytosin und Guanin Bindungen ein (siehe Abb. 2.17) und es bildet sich doppelsträngige DNA (dsDNA).

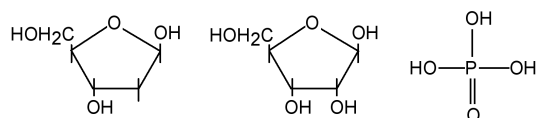


Abbildung 2.15: Von links nach rechts sind die Strukturformeln der Desoxyribose, Ribose und des Phosphat abgebildet.

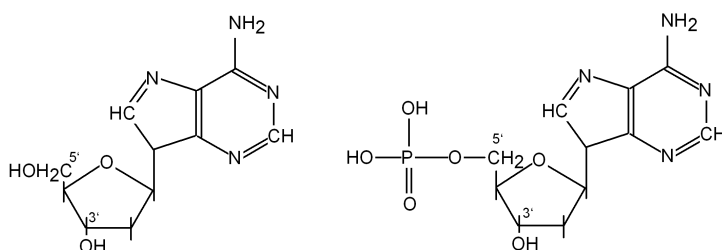


Abbildung 2.16: Links ist ein Nukleosid bestehend aus Adenin und Desoxyribose abgebildet. Rechts findet man ein Nukleotid aus Adenin, Desoxyribose und einer Phosphatgruppe. Dieses Nukleotid wird auch als dAMP bezeichnet. Hierbei steht d für die Desoxyribose, A für das Adenin, M und P für 1 (mono) Phosphatrest; ohne d findet sich die Ribose im Molekülgerüst, T, G, C und U für die entsprechende Stickstoffbase, D (di) und T (tri) vor P bedeuten 2 bzw. 3 Phosphatreste.

Die Phosphatgruppen der DNA tragen je eine negative Ladung, daher ist die DNA als Ganzes negativ geladen und kann mit elektrischen Feldern bewegt werden. Zwei sich gegenüberliegende Nukleotide bezeichnet man als Basenpaar. Die Länge eines DNA-Stücks wird meist in Anzahl der Basenpaare charakterisiert. Die Grundeinheit ist 1 Basenpaar (1 bp). Diese Einheit wird auch mit Präfixen versehen wie 1000 bp=1 kbp (Kilobasenpaar). Die lineare Länge eines Basenpaares beträgt dabei 0,34 nm. Der molekulare Aufbau der DNA (siehe Abb. 2.17) wird auch als die primär Struktur bezeichnet. Da die DNA

Name	Kurzbezeichnung	Masse in u
Desoxyadenosin-5-monophosphat	dAMP	331,23
Desoxythymidin-5-monophosphat	dTMP	322,21
Uridin-5-monophosphat	UMP	340,19
Desoxyguanosin-5-monophosphat	dGMP	347,23
Desoxycytidin-5-monophosphat	dCMP	307,20

Tabelle 2.7: Eigenschaften einiger Nukleotide; in DNA besitzt ein über Estherbrücken gebundenes Nukleotid, allgemein dNMP genannt, eine durchschnittliche Masse von 308,95 u, ein einzelnes Basenpaar 617,90 u.

ein sehr großes Molekül ist, spielt auch ihr dreidimensionales Aussehen eine Rolle für ihre Eigenschaften. Das bekannteste Bild davon ist die  $\alpha$ -Doppelhelix, die zugleich auch die sekundär Struktur darstellt. Die Bindungen der DNA lassen auch Drehungen der einzelnen Molekülgruppen zueinander zu. Deshalb kann die DNA von linearer bis globulärer Form in allen Konformationen vorliegen. Die Tatsache dass die DNA Ladung trägt und unterschiedliches dreidimensionales Aussehen besitzt, macht man sich bei der Trennung verschiedener DNA-Stücke zu Nutze.

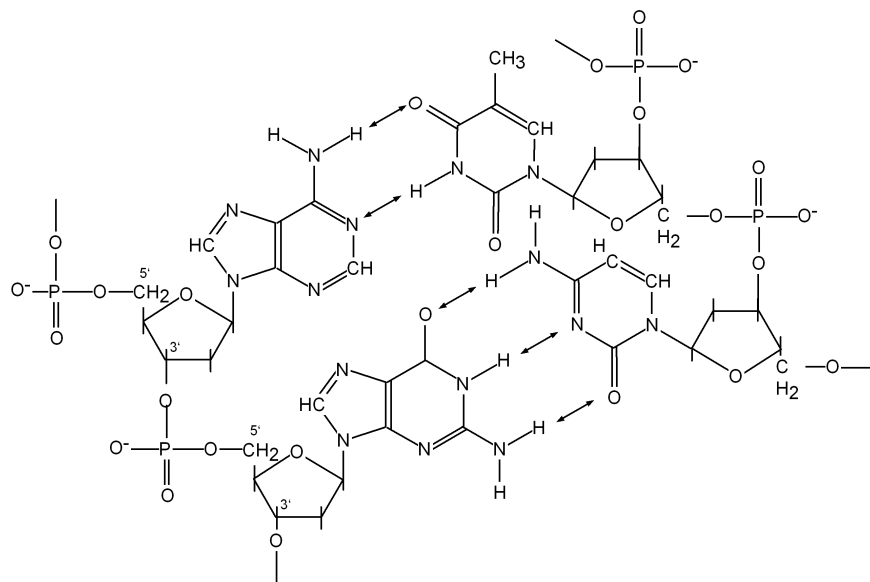


Abbildung 2.17: Zweidimensionale Darstellung eines kurzen DNA-Stücks. Die Pfeile verdeutlichen die Orte der Wasserstoffbrückenbindungen. Da Adenin und Thymin je zwei und Cytosin und Guanin je drei Wechselwirkungsmöglichkeiten für Wasserstoffbrückenbindungen besitzen, binden diese Paare spezifisch miteinander. Je ein Sauerstoffatom der Phosphatgruppen trägt eine negative Ladung.

### 2.7.3 Gelelektrophorese

Die Auftrennung verschiedener DNA-Stränge dient häufig dazu die Funktion und Eigenschaften der Stränge zu untersuchen oder eine Identifizierung durchzuführen. Dabei macht man sich zu Nutze, dass die DNA negative Ladung trägt und somit elektrophoretisch beweglich ist.

Bei DNA ist die negative Ladung an den Phosphatgruppen des Rückgrates lokalisiert. Da jedes Nukleotid eine Phosphatgruppe besitzt, ist die Ladung der DNA direkt proportional zu ihrer Basenpaarzahl bzw. Länge. Nach Gleichung (2.86) besitzen DNA-Stränge in einer Lösung die elektrophoretische Geschwindigkeit

$$v = \frac{qU}{6\pi\eta R d} \quad (2.87)$$

Da der Quotient  $\frac{q}{R}$  für alle DNA-Stränge gleich ist, wandern alle Stränge mit der gleichen Geschwindigkeit, sofern sie in gleicher Geometrie vorliegen, wie z. B. in linearer oder globulärer Form. Dies ist in guter Näherung der Fall.

Um verschieden lange DNA-Stränge trennen zu können, bedient man sich der Geometrie der Stränge. Bei Verwendung von Gelen macht man sich zu Nutze, dass lange DNA-Stränge mit niedrigerer Beweglichkeit durch ein Gel wandern als kurze. Die Gele bestehen aus vernetzten Polymeren. Die Vernetzung bewirkt die Bildung von Poren, durch welche die DNA-Stränge bei einer Gelelektrophorese hindurch driften müssen. Befindet sich nun ein DNA-Strang in einem solchen Netzwerk, bewegt er sich nicht mehr nur entlang des elektrischen Feldes, sondern muss auch durch die Poren des Gels gleiten. Die DNA wandert dabei in linearer Form durch das Gel hindurch. Da die kleineren bzw. kürzeren Stränge leichter durch das Gel gelangen, trennen sich verschieden lange Stränge auf.

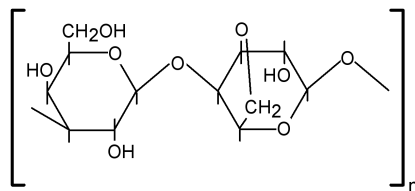


Abbildung 2.18: Darstellung der Strukturformel polymerisierter Agarose; Aufgekochte Agaroselösung geliert beim Abkühlen. Dabei bildet sich ein Netzwerk aus polymerisierter Agarose [Lottspeich98] bestehend aus Fäden zusammengelagerter Doppelhelices. Das Netzwerk besitzt Porengrößen zwischen 150 nm bis 500 nm und ist abhängig von der Konzentration der Agarose in der Lösung.

Dadurch erreicht man die Trennung verschieden langer DNA-Stränge. Das für die Trennung verantwortliche Material, hier das Gel, wird auch Matrix genannt.

Das Modell, welches dieses Verhalten beschreibt, nennt man die Reptationstheorie. Daneben gibt es auch noch die Ogston-Theorie, die besagt, dass die DNA in globulärer Form vorliegt. Der Radius des Stranges wird von der Anzahl der Basenpaare und der Wärmebewegung bestimmt. Bewegt sich ein Strang durch die Gelmatrix, so kommt es zu Kollisionen

zwischen dem Strang und dem Netzwerk des Gels. Je größer der Radius des Stranges im Vergleich zur Porengröße ist, um so häufiger kommt es zu Kollisionen, die die Bewegung im elektrischen Feld stören. Größere Stränge gelangen so langsamer durch die Matrix als kleinere und die Stränge werden in Abhängigkeit von ihrer Länge getrennt.

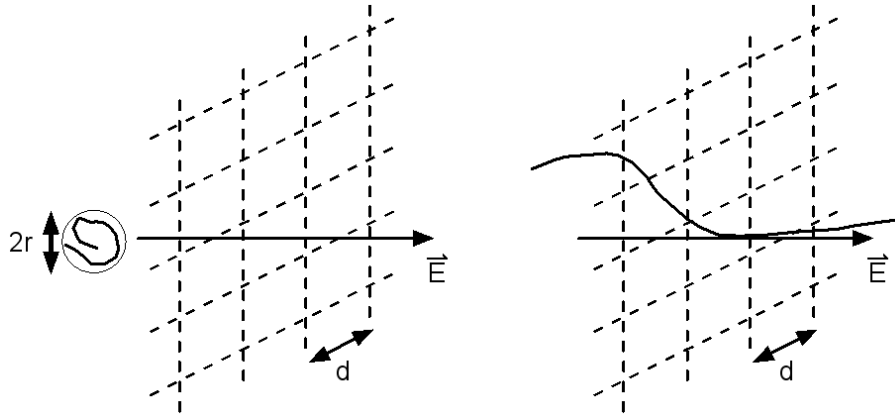


Abbildung 2.19: In der linken Skizze ist dargestellt, wie ein globulärer DNA-Strang nach der Ogston-Theorie, entlang dem elektrischen Feld durch ein Netzwerk wandert. Dagegen wandert in der rechten Skizze ein linearer DNA-Strang nach der Reptationstheorie durch das Netzwerk des Gels.

Reptations- und Ogston-Theorie können dazu benutzt werden das Wanderungsverhalten von DNA-Strängen in einer Gelmatrix zu beschreiben. Allerdings sind beide Theorien nicht in der Lage alle experimentellen Ergebnisse konsistent zu erklären. Die wahre Natur des Wanderungsverhalten wird wohl eher durch eine Mischform dieser beiden Theorien zufriedenstellend beschrieben. Eine solche Theorie existiert aber bislang noch nicht.

## 2.8 Eigenschaften der Carbonnanotubes

Bei den Untersuchungen des Einfluss' der Oberflächenwelle auf Moleküle, wurden größtenteils Carbonnanotubes verwendet. Bei diesen Versuchen wurden einige Eigenschaften der Nanotubes wie Steifigkeit oder Leitfähigkeit genutzt. Das Zustandekommen dieser Eigenschaften lässt sich durch die Geometrie der Nanotubes erklären, weshalb an dieser Stelle darauf eingegangen wird.

Carbon Nanotubes sind gerollte zweidimensionale Kohlenstoffgitter. Sie bilden Röhren. Die Kohlenstoffatome weisen wie in Graphit eine  $sp^2$ -Hybridisierung ihrer Atomorbitale auf, wodurch sich die hexagonale Struktur der Basis und die Steifigkeit der Nanotubes erklärt. Das Gitter wird durch den chiralen Vektor

$$\mathbf{C}_{n,m} = n\boldsymbol{\alpha} + m\boldsymbol{\beta} = (n, m) \quad (2.88)$$



mit beiden Vektoren  $\alpha$ ,  $\beta$  (Def. s. Abb. 2.20) und zwei ganzen Zahlen  $n$ ,  $m$  beschrieben. Die Länge der beiden Vektoren  $\alpha$ ,  $\beta$  beträgt  $a = \sqrt{3}a_{C-C} = 0,246$  nm, wobei  $a_{C-C}$  für den Abstand zwei benachbarter Kohlenstoffatome im Nanotubegitter steht. Die Nanotubes bestehen aus einwandig gerollten Röhren, man spricht in diesem Fall von singel wall nanotubes (SWNT), oder aus mehrwandig konzentrisch gerollten Röhren, multi wall nanotubes (MWNT). Bei SWNT beträgt der Röhrendurchmesser

$$d = \frac{|\mathbf{C}_{n,m}|}{\pi} = \frac{\sqrt{3}a_{C-C}}{\pi} \sqrt{n^2 + nm + m^2} \quad (2.89)$$

mit dem chiralen Winkel (s. Abb. 2.20)

$$\Theta = \arctan \left( \frac{\sqrt{3}m}{2n + m} \right) , \quad (2.90)$$

der bezüglich der Richtung (n,0) gemessen wird.

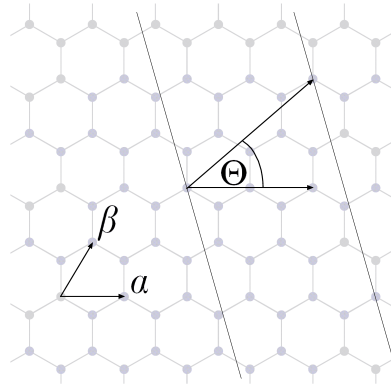


Abbildung 2.20: Hexagonale Gitterstruktur der Röhrenwand eines Nanotubes. Im wesentlichen entspricht der Aufbau dem des Graphits. Zusätzlich eingezeichnet sind die beiden Gittervektoren  $\alpha$  und  $\beta$  sowie der chirale Vektor  $\mathbf{C}$ .

Das hexagonale Gitter kann auf drei Arten gerollt werden. Man unterscheidet dabei zwischen zigzag ( $\Theta = 0$ ), armchair ( $\Theta = 30^\circ$ ) und chiral ( $0 < \Theta < 30^\circ$ ). Die Geometrie des Rollens (s. Abb. 2.21) hat Einfluss auf die Leitfähigkeitseigenschaften der Nanotubes. Als Ausgangspunkt der Betrachtung verwendet man Graphit. Durch die Energiedispersionsrelation der Bandstruktur wird Graphit als Halbmetall (s. Abb. 2.22) charakterisiert und ist leitfähig.

Im k-Raum sieht die Bandstruktur wie zwei Zylinderkegel aus, deren Spitzen aufeinander stehen. Das Fermi-niveau liegt genau im Berührungspunkt der beiden Kegel. Die Fermi-fläche ist zum Punkt entartet. Für Graphit ergibt sich durch Rechnung [Wallace47,

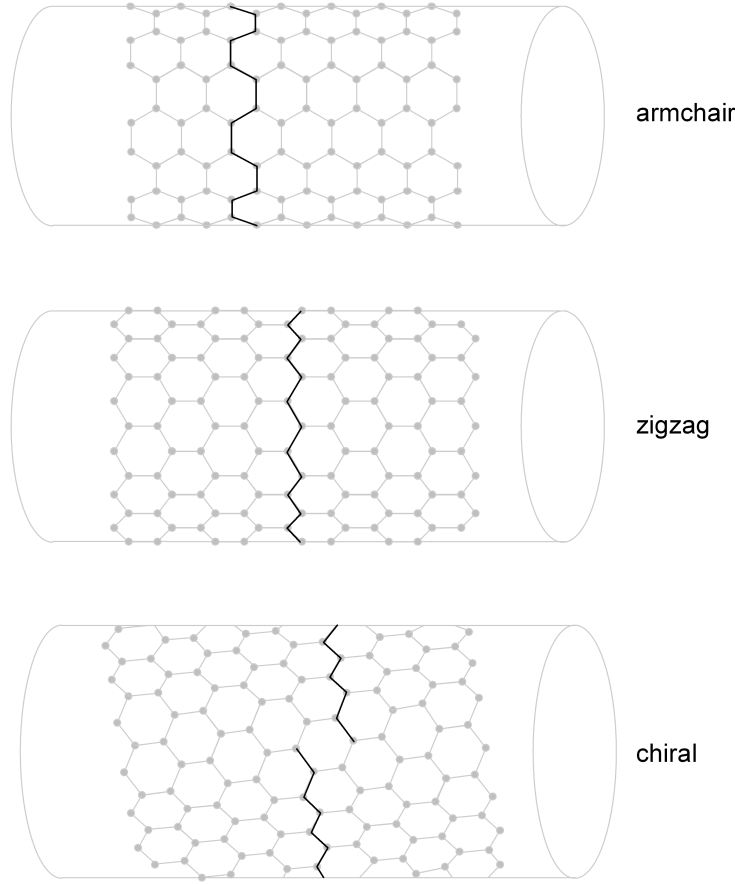


Abbildung 2.21: Ein Graphitgitter kann auf drei Arten aufgerollt werden. Die beiden Grenzfälle sind armchair und zigzag. Wird die Graphitebene schief aufgerollt, entsteht ein Nanotube mit chiraler Struktur.

[Saito92](#)] die Energiedispersionsrelation für Graphit zu

$$E(k_x, k_y) = \pm \gamma_0 \left\{ 1 + 4 \cos \left( \frac{\sqrt{3}k_x a}{2} \right) \cos \left( \frac{k_y a}{2} \right) + 4 \left[ \cos \left( \frac{k_y a}{2} \right) \right]^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (2.91)$$

mit dem Wert des Überlappintegrals  $\gamma_0 = 2,9 \text{ eV}$ . Für SWNT erhält durch das Rollen des Gitters zusätzliche Randbedingungen, die von der Art der Rollens abhängt. Es gilt:

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{C}_{\mathbf{n}, \mathbf{m}=0} = n a k_y = 2\pi \nu \quad \text{für Zigzag SWNT} \quad (2.92)$$

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{C}_{\mathbf{n}, \mathbf{n}} = n a k_x = 2\pi \nu \quad \text{für Armchair SWNT} \quad (2.93)$$

mit  $\nu = 0, 1, 2, \dots, n$ .

Eine Auswertung der Energiedispersionsrelation ergibt, dass sich die Leitfähigkeitseigenschaften der SWNT in metallisch und halbleitend unterscheiden lassen (s. Abb. [2.22](#)).

Je nach Geometrie liegt die Fermikante im Leitungsband (metallisch) oder in der Mitte zwischen Leitungs- und Valenzband (halbleitend), die durch eine Energielücke getrennt sind. Diese Unterscheidung bedingt auch eine unterschiedliche Polarisierbarkeit von halbleitenden und metallischen Nanotubes. Ähnliches gilt auch für MWNT, die aber meist metallische Leitfähigkeit zeigen. Gehorcht die Geometrie eines SWNT der Bedingung

$$2n + m = 3l \quad \text{oder äquivalent} \quad n - m = 3l \quad \text{mit} \quad l \in \{0, 1, 2, \dots\} \quad (2.94)$$

gilt im Allgemeinen, dass es metallisch ist.

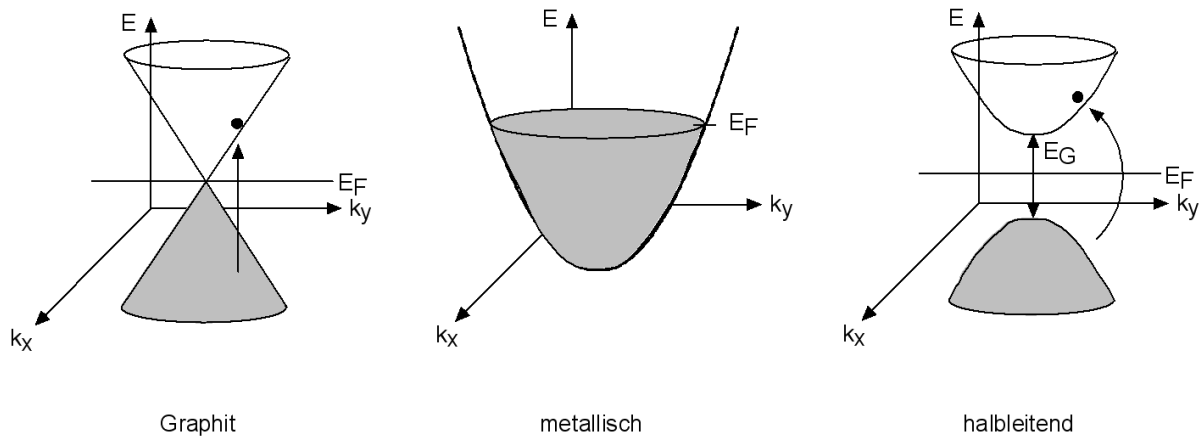


Abbildung 2.22: *links:* Bandstruktur von Graphit bei  $T=0$  K, Leitungs- und Valenzband berühren sich gerade, die Fermifläche ist zu einem Punkt entartet. Durch die thermische Anregung befinden sich stets einige Elektronen im Leitungsband. *mitte:* Im metallischen Fall liegt das Fermi-niveau im Leitungsband, das nicht vollständig besetzt ist. Daher liegt Leitfähigkeit vor. *rechts:* Bei halbleitenden SWNT befinden sich bei  $T=0$  K alle Elektronen im Valenzband. Das Fermi-niveau liegt in der Mitte zwischen Valenz- und Leitungsband. Durch thermische Anregung bei endlicher Temperatur ( $T \neq 0$  K) können stets einige Elektronen die Energielücke  $E_G$  überwinden und befinden sich im Leitungsband.



# Kapitel 3

## Probenpräparation

Zur Herstellung einer akustisch getriebenen Fluidik wurden Chips präpariert. Nach einer Reinigung der Grundsubstrate Lithiumniobat und Lithiumtantalat wurde zur Erzeugung der Oberflächenwelle und für elektrische Kontakte der Chip mit einer Lackmaske vorstrukturiert, mit Metall bedampft und die Struktur anschließend durch Lift-Off hergestellt. Für eine einheitliche und passivierende Oberfläche wurde der Chip mit Quarz beschichtet. Zur Erzeugung der fluidischen Strukturen wurde die Benetzungseigenschaft der Chipoberfläche durch eine weitere Beschichtung moduliert. Diese Schicht wird Sauerstoffplasmaätzen mit Hilfe einer Lackmaske strukturiert. Zum Abschluss werden der elektrische Kontakt zum Chip hergestellt.

In diesem Kapitel wird dargelegt, wie das verwendete Probenmaterial hergestellt wurde. Im ersten Abschnitt werden die physikalischen Gründe und Methoden zu den einzelnen Rezeptabschnitten beschrieben und motiviert. Darauf folgend im zweiten Abschnitt werden in einem Rezept die notwendigen Prozessschritte zur Herstellung dargelegt. Anschließend wird im dritten Abschnitt darauf eingegangen, wie mit den Proben während eines Experiments umgegangen wurde.

### 3.1 Hintergrund

Im folgenden Abschnitt werden die Einzelschritte des Gesamtprozesses und Methoden der Probenpräparation motiviert und dargestellt, die angewandt wurden, um einen Chip für eine akustisch getriebenen Fluidik herzustellen. Der Entwurf für das Aussehen des Chips, seiner späteren Funktion und Beschichtungen ergibt die Abfolge der Prozessschritte.

#### Reinigen

Die Reinigung der Substrate dient der Entfernung organischer Reste oder Staubpartikel. Diese stammen meist aus dem Herstellungsprozess der Wafer, von dem die Proben genommen werden.

In einem ersten Acetonbad werden organischen Reste entfernt, soweit diese polar sind. Da-

bei handelt es sich meist um Reste einer Schutzbelackung aus dem Herstellungsprozess des Wafers. Im Ultraschallbad werden anhaftende Partikel von der Oberfläche abgelöst, so dass sie danach nur noch locker auf der Oberfläche sitzen. Die anschließende Entnahme der Proben aus einem ersten Reinigungsbad unter einem Strahl kalten Acetons (s. Abb. 3.1) erfüllt zwei Zwecke. Zum einen werden die zuvor gelockerten Partikel von der Oberfläche gespült und zum anderen wird das noch warme Aceton durch kaltes ersetzt. Bei der Entnahme der Probe aus dem Bad bleibt im Allgemeinen ein kleiner Acetonüberstand auf der Probe. Wenn das Aceton noch warm ist, verdunstet dieses schneller. Dabei bleibt ein Rückstand<sup>1</sup> auf der Probenoberfläche, der nicht mehr nichtinvasiv entfernt werden kann. Durch den Austausch mit kaltem Aceton verlängert sich so die Zeit bis zur völligen Verdunstung für den Probentransfer ins zweite Bad. Bei der Entnahme aus dem zweiten Bad wird statt des Aceton- ein Isopropanolstrahl verwendet. Isopropanol ist etwas zäher und setzt sich besser an noch vorhandene Partikel fest. Beim anschließenden Abblasen des Isopropanols von der Probe werden die Partikel besser entfernt. Auch hinterlässt Isopropanol beim Verdunsten weniger Rückstände als Aceton, wodurch eine größere Reinheit gewährt ist. Eine abschließende Reinigung mit Sauerstoffplasma entfernt dann die letzten organischen Reste, da der atomare, hochreaktive Sauerstoff im Plasma diese verbrennt<sup>2</sup>.

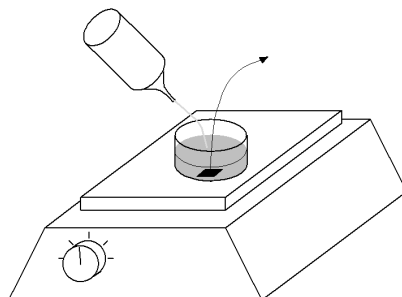


Abbildung 3.1: Reinigung eines Chips in einem Bad aus heißem Aceton und anschließende Entnahme unter einem Strahl aus kaltem Lösungsmittel.

## Lithographie

Bei der Herstellung von Oberflächenwellenbauteilen und akustisch getriebenen Fluidiksystemen, verwendet man zur Herstellung der elektrischen Leitungen, Schallwandler oder Strukturierung Fotolithographie. Die Fotolithographie (Skizze s. Abb. 3.2) wird genutzt um kleine Strukturen auf einem Chip zu erzeugen. In einem Schleudervorgang wird Fotolack auf die Probe aufgebracht. Mit dem Schleudern erzeugt man eine glatte Lackschicht

<sup>1</sup>Der Herstellungsprozess bedingt immer eine geringe Verunreinigung des Acetons

<sup>2</sup>Alternativ zu diesem Rezept können die Proben auch mit sogenannter Piraña-Lösung (75% konz. Schwefelsäure, 25% Wasserstoffperoxid) behandelt werden. Beim Umgang mit dieser Lösung ist höchste Vorsicht geboten, da die Lösung beim Ansetzen zu kochen anfängt und es sich um ein äußerst starkes Oxidationsmittel handelt.

definierter Dicke. Der Fotolack dient in weiteren Prozessen als Schutzlack oder Ätzmaske. Mit einem Maskaligner werden die Proben mit Hilfe einer Maske, auf der die gewünschte Struktur bereits vorhanden ist, belichtet. Dabei werden Maske und Probe mit Hilfe des Maskaligners zueinander ausgerichtet, so dass die Struktur auf die gewünschte Stelle belichtet wird. Bei der Belichtung wird der Fotolack oder einer seiner Bestandteile chemisch verändert, so dass er andere Lösungseigenschaften als unbelichteter Lack besitzt. Bei Verwendung eines positiv Lacks bedeutet dies, dass der belichtete Lack sich bei der Entwicklung von der Probe löst, während der unbelichtete Lack auf der Probe bleibt. Die Spülung mit Wasser nach der Entwicklung stoppt den chemischen Prozess und die Lackmaske ist hergestellt. Die Qualität der Lackmaske ist vor dem nächsten Prozess unter dem Mikroskop zu prüfen. Dabei ist hauptsächlich darauf zu achten, dass die Maske vollständig entwickelt ist und die Kanten klar zu erkennen sind. Bei unvollständiger Entwicklung erkennt man in den entwickelten Stellen Farbschlieren, die durch Interferenzeffekte zustande kommen. Sie deuten auf dünnen Lackreste hin, die durch nachentwickeln entfernt werden können. Die Probe wird dazu für kurze Zeit nochmals in den Entwickler gelegt. Falls die Kantenqualität durch unscharfe Kanten beeinträchtigt ist, besteht die Möglichkeit, dass die optimale Entwicklungszeit überschritten ist. Der Entwicklungsprozess sollte an dieser Stelle beendet werden.

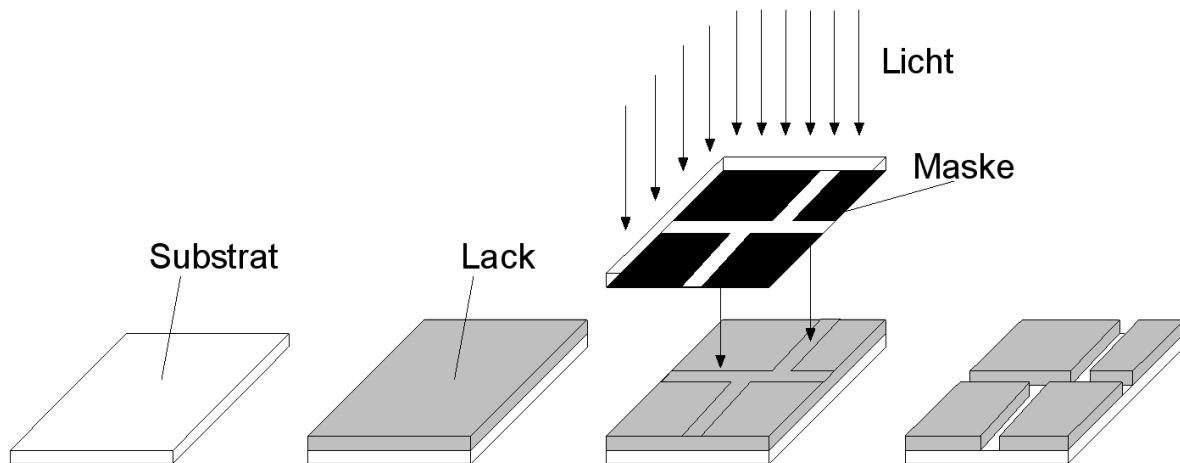


Abbildung 3.2: Bei Durchführung der Fotolithographie wird ein Substrat mit einer Lackschicht versehen. Der Lack wird belichtet. Dabei wird mit einer Maske, auf der sich die gewünschte Struktur befindet, die Struktur in den Lack abgeleitet. Nach der Entwicklung des Lackes befindet sich eine strukturierte Lackmaske auf der Oberfläche des Substrats.

Eine Struktur bzw. Lackmaske kann auch durch zwei Entwicklungsschritte hergestellt werden. Nach der Herstellung des ersten Teils der Struktur, muss die Probe mit der Lackmaske wieder ausgebacken werden, damit der Fotolack erneut aushärtet. Dieser wurde durch den Entwicklungsschritt wieder weich. Nach dem erneuten Ausbacken kann der zweite Teil der Struktur zur endgültigen Herstellung der Lackmaske belichtet werden. Durch diese Vorgehensweise kann man, ohne neu belacken zu müssen, eine komplexere Struk-

tur durch Einzelschritte herstellen. Dies bietet sich besonders bei modularem Aufbau der Strukturen und Masken an.

## Metallisieren

Zur Herstellung der elektrisch leitenden Strukturen auf einem Chip wird Metall auf der Probenoberfläche aufgedampft. Bei einem Fluidiksystem auf Oberflächenwellenbasis sind dies die Schallwandler, elektrischen Leitungen und Kontakte.

Die zu bedampfende Oberfläche muss mit einem Sauerstoffplasma behandelt sein, da die Metallisierung sonst nicht fest auf der Oberfläche haftet. Für den Fall dass sich auf der Probe eine Lackmaske für den Lift-Off befindet, darf diese durch das Sauerstoffplasma nicht zerstört werden. Auf der sauberen Oberfläche erfolgt dann der Metallisierungsprozess. Da nicht alle Metalle auf allen Oberflächen gut haften, muss zuvor meist eine Metallschicht als Haftvermittler abgeschieden werden, die für die notwendige Haftung sorgt. Falls auf die Metallisierung wiederum eine inkompatible Schicht aufgebracht wird, muss erneut ein Haftvermittler aufgetragen werden.

Beispielsysteme dafür sind z.B. Gold auf Lithiumniobat, das nicht haftet und daher Titan als Haftvermittler benötigt, und Quarz auf Gold, das wiederum Titan zur Haftvermittlung benötigt.

## Lift-Off

Beim Lift-Off erhält eine Oberfläche oder Beschichtung eine definierte Struktur.

Die Probe wird hierbei in ein Lösemittel für die Lackmaske gelegt (s. Abb. 3.3). Die Lackmaske löst sich auf und die darüber liegende Schicht haftet nicht mehr auf der Probe, sondern hebt sich von der Probenoberfläche ab und wird in der Lösung suspendiert. Eine Beschichtung direkt auf der Probenoberfläche verliert ihre Haftung nicht und bleibt vom Lösevorgang unbeeinträchtigt. Falls diese Vorgehensweise nicht ausreicht, legt man die Probe für kurze Zeit bei niedriger Leistung in ein Ultraschallreinigungsgerät, die Schicht löst sich dann schneller ab. Dabei muss vorsichtig gearbeitet werden, da diese Vorgehensweise auch einen Stress für die gewünschte Struktur darstellt und sich diese ebenfalls ablösen kann.

Nach erfolgreichem Lift-Off muss die Probe abermals gereinigt werden, um Lack- und Lösungsmittelreste von der Oberfläche zu entfernen. Dazu reicht eine Behandlung mit einem Sauerstoffplasma aus.

## Passivieren

Ein Chip für biologische Anwendungen kommt fast immer mit Salzen oder aggressiven Chemikalien in Kontakt. Dadurch nehmen die Metallisierungen Schaden. Eine Schutzschicht aus inertem Quarz dient hierbei als Passivierung. Zusätzlich zu diesem Problem kommt die historische Tatsache, dass biologische Applikationen fast ausnahmslos auf Glas entwickelt wurden. Daher ist es sinnvoll eine einheitliche Oberfläche zu verwenden. Zudem zeigen Quarzoberflächen bessere Eigenschaften für den Bau eines mikrofluidischen Systems



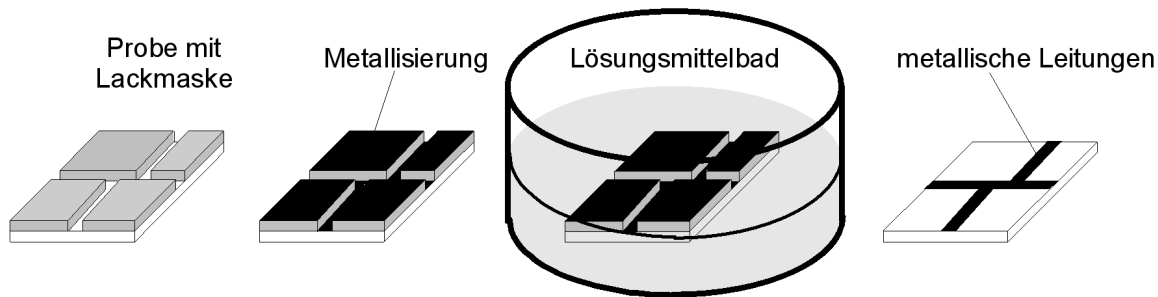


Abbildung 3.3: Beim Lift-Off gibt man eine mit Metall bedampfte Probe in ein Bad. Das Bad besteht aus einem Lösungsmittel, das die Lackmaske auflöst. Dadurch wird die metallische Struktur auf der Oberfläche der Probe erzeugt.

als reine Lithiumniobat- oder Lithiumtantalatoberflächen. Aus diesen Gründen wurde die Oberfläche der Oberflächenwellenchips zur Anwendung in der Fluidik mit Quarz beschichtet.

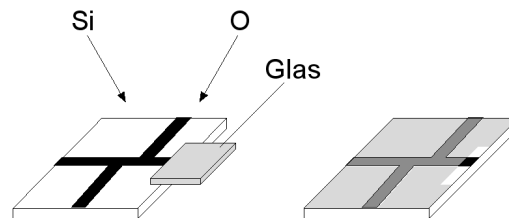


Abbildung 3.4: Die Oberfläche der Probe wird mit Quarz beschichtet. Die Glasabdeckung verhindert, dass der Kontakt mit Quarz bedeckt wird.

In einem PECVD-Prozess (plasma enhanced chemical vapor deposition) werden unterschiedliche Gase in eine Prozesskammer eingeleitet. Beim Zünden eines Plasmas reagieren diese miteinander und die gewünschte Schicht scheidet sich auf der Probenoberfläche ab. Vor dem PECVD-Prozess muss die Probenoberfläche mit einem Sauerstoffplasma behandelt worden sein, da sonst organische Reste ein Haften der Quarzschicht verhindern und sich diese während des Experiments in kurzer Zeit ablöst. Es ist sinnvoll die Quarzschicht dicker als die Metallisierung zu machen, da sonst aggressive Chemikalien die Metallisierung von der Seite angreifen. Damit die Quarzschicht auch auf den Metallisierungen hält, muss gegebenenfalls zwischen Metallisierung und Quarz wiederum ein geeigneter Haftvermittler sein. Dafür ist Titan geeignet und eine 5 nm dicke Beschichtung bereits ausreichend. Der PECVD-Prozess erfordert eine hohe Temperatur. Dies kann zu Problemen führen. Legt man eine Probe mit Raumtemperatur auf den heißen Probenhalter der Anlage, erfährt sie einen Temperaturgradienten. Lithiumniobat hat pyroelektrische Eigenschaften, weshalb es auf den Gradienten mit Funkenschlag reagiert. Dieser Funkenschlag kann die Probe unter Umständen zerstören. Dies passiert mit größerer Wahrscheinlichkeit bei großflächigen Proben. Um dies zu vermeiden empfiehlt es sich die Probe vorzuheizen. Nach dem Prozess tritt das analoge Problem auf. Die Probe sollte daher langsam abkühlen.

Die elektrischen Kontakte sollten vom Quarz frei bleiben. Eine Abdeckung der Kontakte (s. Abb. 3.4) verhindert eine Beschichtung mit Quarz, so dass ein anschließender, zeit- aufwändiger Ätzschritt zur Freilegung der Kontakte entfallen kann. Kontaktiert man das Probenmaterial mittels einer Kaltlötung wie dem Bonden, kann die Passivierungsschicht vom Bondapparat durchdrungen werden. Dazu muss der Parameter, der die Kraft beim Lötvorgang definiert etwas erhöht werden. Diese Methode kann bei Schichtdicken bis zu 400 nm angewendet werden.

Alternativ zur Passivierung mit einer PECVD-Anlage kann die Oberfläche auch in einem Sputter-Prozess passiviert werden. Dabei werden Ionen eines Plasmas auf ein so genanntes Target geschleudert. Das Target besteht aus dem Material, das aufgebracht werden soll. Der Ionenbeschuss löst Teilchen aus dem Target, die sich auf der Probe abscheiden. Auf diese Weise wird die Probe beschichtet. Die Beschichtung aus einer Sputteranlage zeigt bei einigen Versuchen eine geringere Qualität als das PECVD-Material.

## Silanisieren

Die Herstellung eines Kontrasts aus hydrophilen und hydrophoben Oberflächen schafft mikrofluidische Strukturen [Herminghaus99]. Quarz, Lithiumniobat und Lithiumtantalat sind von Natur aus hydrophil. Eine Beschichtung mit hydrophoben Charakter erlaubt in Kombination mit Lithographie die Schaffung mikrofluidischer Strukturen. Zur Herstellung eines Fluidischen Systems auf einem Oberflächenwellenchip wird die Oberfläche des Chips beschichtet. Dabei wird in einem Silanisierungsprozess eine Schicht chemisch gebunden, die eine neue Oberflächenchemie definiert.

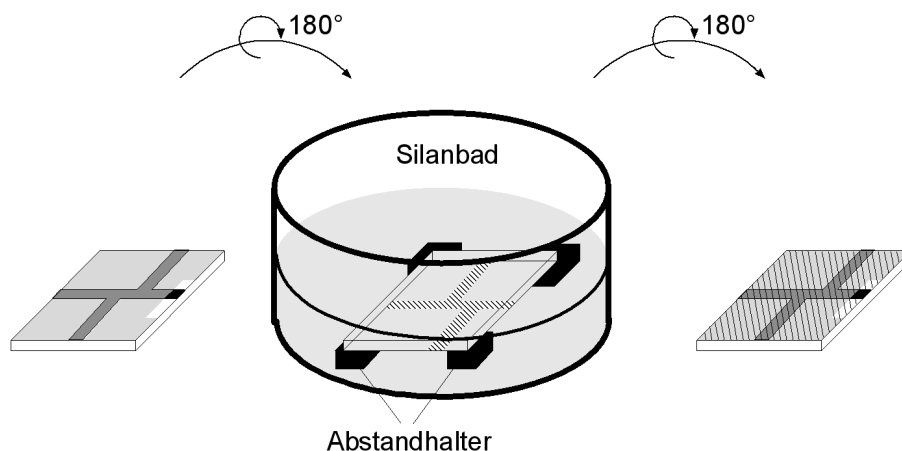


Abbildung 3.5: Durch kopfüber hineinlegen der Proben in ein Silanbad, wird die Oberfläche des Chips silanisiert. Beim Einlegen des Chips in das Bad wird dieser auf Abstandshalter gelegt.

Bei der Silanisierung [Xiao95, Brzoska94] wird eine selbstorganisierende, monomolekulare Schicht auf die Probenoberfläche prozessiert. Man spricht daher auch von SAM-Schichten

(self assembling monolayers). In diesem Prozess wird eine Schicht aus Molekülen mit einer reaktiven Kopfgruppe an die Oberfläche chemisch gebunden. Diese Klasse von Molekülen besitzt meist eine lange Kohlenwasserstoffkette, an deren anderen Ende die sogenannte Endgruppe sitzt, die in der Folge die neue Oberflächenchemie bestimmt.

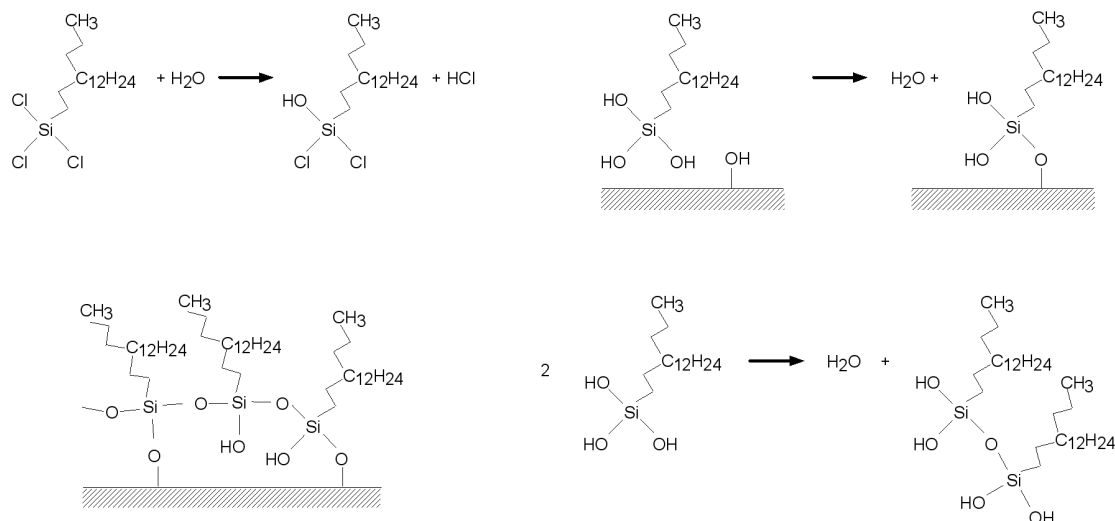


Abbildung 3.6: Links oben wird ein Zwischenschritt bei der Bindung des OTS an die Oberfläche verdeutlicht. Die Chloratome werden nach und nach gegen OH-Gruppen substituiert, dabei entsteht Salzsäure. Wegen der Passivierung greift diese aber nicht die Metallisierung an. Im zweiten Schritt, rechts oben zu sehen, binden die OTS-Moleküle kovalent über Sauerstoffbrücken an die Substratoberfläche. Dabei binden sie an OH-Gruppen der Kristalloberfläche. Nach der Silanisierung ähnelt die Situation auf der Probenoberfläche der im Bild links unten. Die OTS-Moleküle binden entweder direkt an die Oberfläche oder untereinander, so dass nicht jedes Molekül direkt an das Substrat gebunden ist. Im Bild rechts unten reagieren zwei OTS-Moleküle untereinander und bilden ein Dimer. Dies ist der erste Schritt beim Polymerisieren des OTS.

Bei Beschichtung mit Octadecyltrichlorsilan (OTS) bindet das Molekül über Sauerstoffbrücken kovalent an die Oberfläche. Die endständige CH<sub>3</sub>-Gruppe ist unpolar, weshalb die neue Oberflächenchemie hydrophob ist. Dieser Vorgang wird auch alkylieren genannt. Da die Moleküle untereinander ebenfalls über Sauerstoffbrücken Verbindungen eingehen können, polymerisiert das OTS. Das polymerisierte OTS fällt in der Lösung als kleine Krümel aus, die die Probenoberfläche gegebenenfalls kontaminieren. Die mikrofluidischen Eigenschaften werden durch die Kontamination nachhaltig gestört. Die Kontamination verhindert einen gleichmäßigen Transport eines Tropfens durch eine Oberflächenwelle [Strobl01]. Zur Vermeidung der Kontamination der Probenoberfläche verwendet man eine filtrierte OTS-Lösung und hängt die Proben kopfüber in die Lösung (s. Abb. 3.5). Die Probenoberfläche zeigt dann nach unten und die Krümel setzen sich auf der Chiprückseite ab. Die Vorderseite bleibt sauber. Nach der Entnahme der Chips aus dem Silanbad wird der Chip in Hexan- und Chloroformbädern gereinigt.

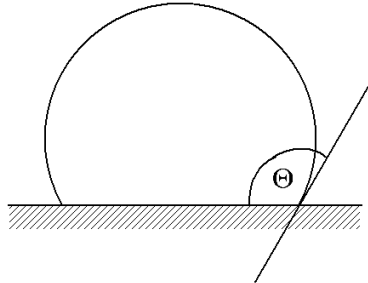


Abbildung 3.7: Definition des Kontaktwinkels

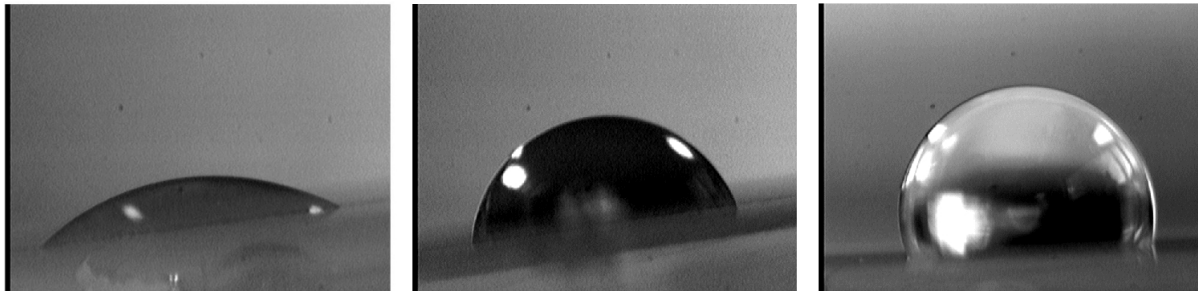


Abbildung 3.8: Tropfen auf verschiedenen Oberflächen – *links*: Tropfen auf einer mit Plasma behandelten  $\text{LiNbO}_3$ -Oberfläche. Der Tropfen (schwarz) hat einen sehr kleinen Kontaktwinkel (Definition s. Abb. 3.7). *mitte*: Benetzt der Tropfen eine hydrophile Oberfläche ist der Kontaktwinkel spitz, *rechts* dagegen benetzt der Tropfen eine hydrophobe Oberfläche, der Kontaktwinkel ist stumpf. Die Oberfläche im mittleren Bild entspricht einer unbehandelten, natürlichen  $\text{LiNbO}_3$ -Oberfläche im rechten einer silanisierten. Der Unterschied der Benetzungseigenschaften zwischen linkem und mittlerem Bild ist durch einen Degradationseffekt begründet. Auf allen drei Bildern sieht man an den Reflexionen des Umgebungslichts. Diese Reflexe können zur Beobachtung des Tropfens während des Experiments genutzt werden. Im rechten Bild sieht man in der Tropfenmitte eine Abbildung des Hintergrunds. Die gekrümmte Oberfläche des Tropfens lässt diesen wie eine Linse wirken. Die Oberflächenkrümmung muss bei der Auswertung oder Aufnahme eines Experiments berücksichtigt werden.

## Strukturierung der Benetzungsmodulation

Zur Schaffung der mikrofluidischen Strukturen muss die modulierte Oberflächenchemie strukturiert werden. Durch diesen Schritt werden Fluidische Schienen, Bahnen oder Befüllungsstrukturen erzeugt [Strobl01], wie sie in einer akustisch getriebenen Fluidik ihren Einsatz finden.

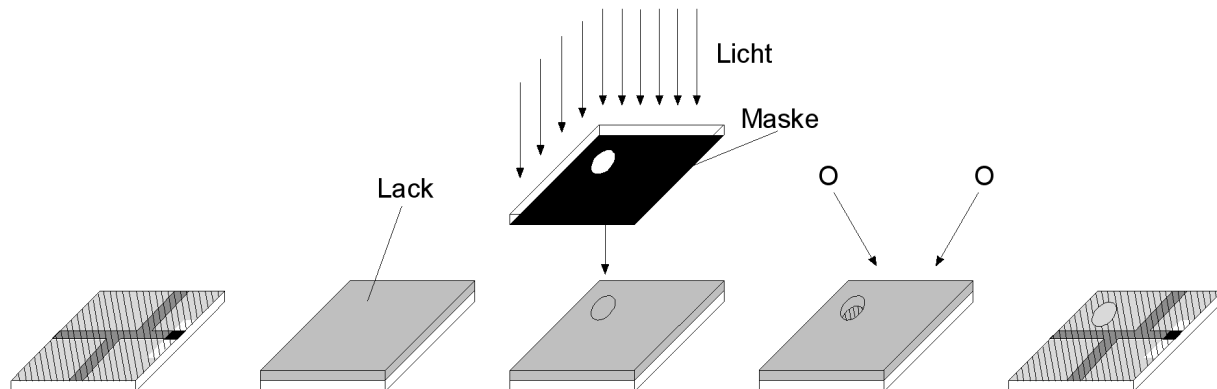


Abbildung 3.9: Die Benetzungsmodulation wird durch Sauerstoffplasma ätzen strukturiert. Auf der Probe wird eine strukturierte Lackmaske erzeugt, die als Ätzmaske dient. Die Sauerstoffradikale im Plasma verbrennen die Silanmoleküle der Benetzungsmodulation, die nicht durch Fotolack abgedeckt sind.

Im ersten Schritt werden die Probe mit einer wunschgemäß strukturierten Lackmaske versehen (s. Abb. 3.9). In diesem Fall dient die Lackmaske als Schutzlack. Die Probe wird für kurze Zeit mit einem Sauerstoffplasma behandelt. Das Plasma verbrennt die OTS-Moleküle, die nicht vom Lack geschützt werden. Nach entfernen der Lackmaske (ohne einen abschließenden Plasmaschritt) hat man eine Probenoberfläche, deren Benetzungsmodulation die gewünschte mikrofluidische Struktur aufweist. Die mit Plasma behandelten Stellen weisen einen Degradationseffekt auf [Strobl01], der nach 7 Tagen abgeklungen ist. Durch die Behandlung mit dem Plasma liegt eine unnatürlich hydrophile Oberfläche vor, die innerhalb in diesem Zeitraum in ihren natürlichen Zustand zurückrelaxiert. Die Oberfläche ist in diesem Zeitraum stärker polar als in ihrem natürlichen Zustand, wodurch Wasser – ebenfalls polar – ausgeprägter als sonst die Oberfläche benetzt. Die Benetzungsmodulation weist daher bei Benutzung in den ersten Tagen ein zeitabhängiges Verhalten auf. Finden sich in der Struktur der Benetzungsmodulation keine zu kleine laterale Krümmungsradien verursacht die Oberflächendegradation keine Probleme.

## Integration in den Messaufbau

Zur Integration des Chips in den Messaufbau (s. Abb. 2.6) und Herstellung des elektrischen Kontakts wird die Probe auf einen Probenhalter geklebt (s. Abb. 3.10) oder in einen vorgesehenen Schacht eingelegt. Der elektrische Kontakt zur Probe wird durch Bonden oder

Druckkontakte hergestellt. Nach diesem Schritt kann der Chip für die Messung verwendet werden.

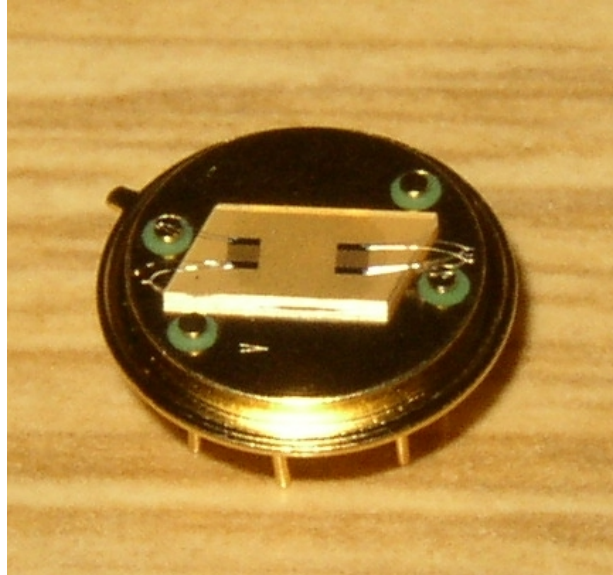


Abbildung 3.10: Auf einen TO-Sockel ist eine Lithiumniobatprobe aufgeklebt. Man sieht deutlich die Bonddrähte, die die Pins mit den elektrischen Kontakten der Transducer verbinden.

Beim Bonden handelt es sich um eine Kaltlötung. Dabei wird ein dünner Draht durch Ultraschall auf eine Metallisierung auf den Chip gelötet, der den elektrischen Kontakt zwischen den Zuleitungen der Probe und einem Pin des Halters herstellt, an dem ein elektrisches Signal von außen angelegt wird. Durch den Ultraschall wird der Draht bei Kontakt mit der Metallisierung durch Reibung mit der Oberfläche verbunden, weil sich eine Metallbindung ausbildet. Wird eine Probe, die mit einem Elektrolyten in Kontakt kommt, gebondet, so sollte man darauf achten, dass der Bonddraht und die Metallisierung des Chips aus demselben Material sind. Andernfalls kommt es zu Korrosion des unedleren der beiden Metalle, wenn diese über den Elektrolyten leitend miteinander verbunden werden (s. dazu Tab. 3.1). Dies ist ein elektrochemischer Vorgang, der zur völligen Korrosion des unedleren Metalls führt.

Beim Bonden mit Druckkontakten (s. Abb. 3.11) werden die Zuleitungen des Chips mit sogenannten Pogo-Pins kontaktiert, die wiederum mit außen verbunden sind.

Redoxsystem	Potential in V
$\text{Al} \rightleftharpoons \text{Al}^{3+} + 3\text{e}^-$	-1,70
$\text{Ti} \rightleftharpoons \text{Ti}^{2+} + 2\text{e}^-$	-1,63
$\text{Cr} \rightleftharpoons \text{Cr}^{3+} + 3\text{e}^-$	-1,00
$\text{Ni} \rightleftharpoons \text{Ni}^{2+} + 2\text{e}^-$	-0,22
$\text{H}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons 2\text{H}_3\text{O}^+ + 2\text{e}^-$	0,00
$\text{Au} \rightleftharpoons \text{Au}^{3+} + 3\text{e}^-$	1,30
$\text{Pt} \rightleftharpoons \text{Pt}^{2+} + 2\text{e}^-$	1,60

Tabelle 3.1: Die Spannungsreihe der Metalle ordnet die Metalle nach dem Potential ihres Redoxsystem. Die unedlen Metalle haben negative Potentiale, die edlen Metalle positive. Der edle Charakter eines Metalls nimmt von oben nach unten zu.

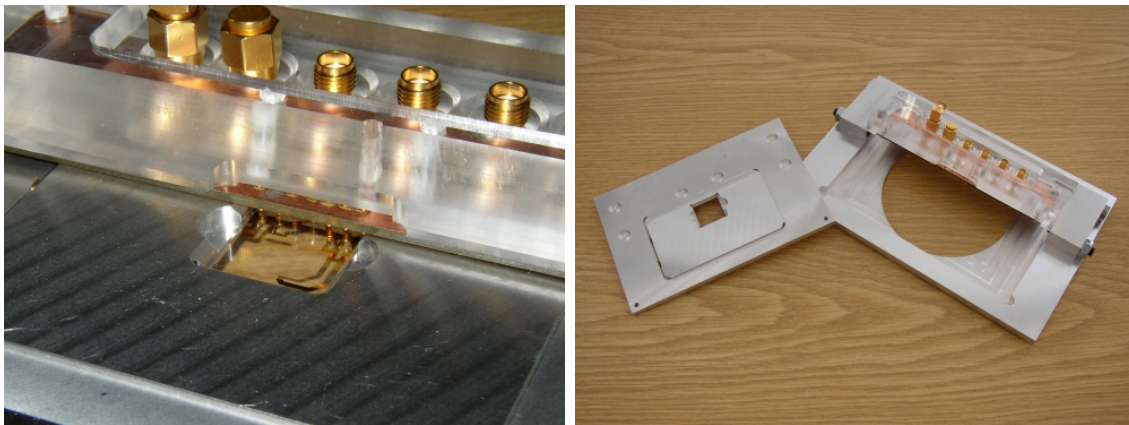


Abbildung 3.11: Links liegt die Probe in der Aussparung des Halters. Die Pogo-Pins pressen auf die Probe und stellen so den elektrischen Kontakt zu außen her. Zugleich besteht die Möglichkeit diesen Halter auch für optische Untersuchungen zu verwenden. Wird Lithiumniobat beidseitig poliert, ist es durchsichtig. Der Chip liegt freitragend in der Aussparung, durch die mit einem Mikroskop geschaut werden kann. Rechts ist die Einlegeplatte mit der Aussparung abgebildet. Durch austauschen der Einlegeplatte, kann der Halter auch für verschiedene Chipgrößen benutzt werden.

## 3.2 Herstellung

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Prozessschritte in Rezeptform dargelegt. Folgende Vorgehensweise wurde gewählt:

### Reinigen

- Proben für etwa 5 Minuten in ein heißes Acetonbad geben
- Proben im Acetonbad für 2 Minuten bei hoher Leistung in ein Ultraschallbad geben
- Proben aus dem ersten Bad unter Spülung mit kaltem Aceton nehmen, so dass ein neuer Acetonüberstand auf der Probe ist, und in ein zweites Bad mit heißem Aceton geben
- Proben im zweiten Bad ebenfalls für etwa 5 Minuten belassen
- Bei der Entnahme der Proben aus dem zweiten Acetonbad mit Isopropanol abspülen
- Proben in ein Sauerstoffplasma geben; am Lab-Ash 100 lauten die Parameter 1 Minute bei 50 Watt

### Lithographie

- etwa 1,2  $\mu\text{m}$  dicken Fotolack durch Schleudern aufbringen; mit 1813'er Fotolack der Fa. Shipley eignen sich die Schleuderparameter 3 Sekunden,  $800\text{ min}^{-1}$  und 30 Sekunden  $5500\text{ min}^{-1}$
- Fotolack 30 Minuten bei  $90^\circ\text{ C}$  ausbacken
- Die belackten Proben durch Kontaktlithographie mit einem Maskaligner 20 Sekunden lang belichten
- anschließend den belichteten Lack 20 Sekunden lang entwickeln

### Metallisieren

- Proben zuvor mit Sauerstoffplasma behandeln
- Proben zuerst mit einem Haftvermittler bedampfen; hier wurde zwischen 10 und 20 nm Titan verwendet
- gewünschte Metallschicht aufdampfen, z.B. 100 nm Aluminium oder Gold
- falls erforderlich eine zweite Schicht Haftvermittler aufdampfen, z.B. 5 nm Titan



## Lift-Off

- Probe zum Lift-Off in heißes Aceton legen
- gegebenenfalls das heiße Acetonbad bei niedriger Leistung in ein Ultraschallreinigungsgerät stellen
- Proben nach dem Lift-Off nach Reinigungsrezept auf Seite 50 reinigen

## Passivieren

- Passivieren der Proben durch Aufbringen einer Quarzschicht mit einem PECVD-Prozess, beispielsweise 200 nm SiO<sub>2</sub>
- elektrische Kontakte gegebenenfalls abdecken
- Proben in der PECVD mit 200 nm SiO<sub>2</sub> bedecken;

## Silanisieren

- die Proben für 30 Minuten in eine filtrierte Lösung aus 30 ml n-Hexan mit 24 µl Octadecyltrichlorsilan<sup>3</sup> (SiCl<sub>3</sub>C<sub>18</sub>H<sub>37</sub> oder OTS) geben; Proben dabei kopfüber in die Lösung hängen und alles in einen Kühlschrank stellen
- nach der Entnahme aus der Silanlösung, Spülung der Proben in je zwei n-Hexan- und Chloroformbädern
- Chloroformreste abblasen, wenn diese nicht von selbst abperlen

## Strukturierung der Benetzungsmodulation

- Belacken, belichten und entwickeln der Probe wie auf Seite 50 beschrieben
- Proben für kurze Zeit mit einem Sauerstoffplasma behandeln,
- reinigen der Probe von der Lackmaske wie auf Seite 50 beschrieben ohne den abschließenden Plasmaschritt

## Integration in den Messaufbau

- Probe in einen geeigneten Halter legen oder festkleben
- bonden bzw. kontaktieren der Probe

---

<sup>3</sup>Wenn in dieser Arbeit von Silan gesprochen wird, so ist stets das OTS gemeint nicht das Gas SiH<sub>4</sub>.

### 3.3 Probenhandhabung und Ergebnisdokumentation

Die Komplexität eines Versuchsaufbaus und -ablaufs wird entscheidend von der Handhabbarkeit der Proben bzw. des Probenmaterials beeinflusst. In diesem Abschnitt wird darauf eingegangen, wie mit einem Fluidiksystem auf Basis der Oberflächenwelle während und außerhalb des Experiments umgegangen wird. Weiter wird auch auf den allgemeinen Ablauf, die Dokumentation und die Vorbereitungen zu einem Versuch dargelegt.

Die Aufbewahrung der Proben nach der Herstellung und zwischen den Experimenten ist problemlos. Einzig auf staubfreie Aufbewahrung ist zu achten. Meist kann der Staub mit Druckluft abgeblasen werden, aber wenn dies nicht möglich ist, muss man ihn mit invasiven Methoden entfernen, die zur Zerstörung der Proben führen können.

Zu Beginn des Versuchs muss man die Hochfrequenzeigenschaften des Bauteils kennen. Die Hochfrequenzeigenschaften eines Bauteils werden mit einem Netzwerkanalysator bestimmt. Ein Netzwerkanalysator versorgt ein Bauteil mit einem bekannten Hochfrequenzsignal und misst die Transmissions- und Reflektionsanteile des Signals des Bauteils. Über mathematische Verfahren werden die Transmissions- und Reflektionswerte ermittelt sowie auch das Zeitverhalten des Bauteils. Auf diese Weise lernt man die Hochfrequenzeigenschaften des Bauteils kennen, z.B. die Resonanzfrequenz.

Zur Versuchsdurchführung wird der Chip mit den Messgeräten elektrisch verbunden. Zur elektrischen Kontaktierung der Proben verwendet man TO-Sockel (s. Abb. 3.10) oder Druckkontakte. Bei TO-Sockeln handelt es sich um hermetisch abschließbare Transistorgehäuse mit Glasdurchführungen für die Pins. Die Herstellung des elektrischen Kontakts durch Druckkontakte (s. Abb. 3.11) ist eine sehr vorteilhafte Methode. Die Probe wird dazu mit Pogo-Pins kontaktiert, die gefedert gelagert sind, um sie nicht zu fest anzupressen. Daneben ist die Probe leicht austauschbar, wodurch ein schneller Wechsel des Chips oder Einbau ermöglicht. Dies führt zu einer Beschleunigung der Versuchsdurchführung durch eine geringere Rüstzeit.

Während des Experiments ist die Temperatur des Halters und so auch der Probe mit einem Peltier-Element kontrollierbar. Dies erweist sich besonders nützlich beim Umgang mit Tropfen deren Volumen kleiner als 1 nl ist. Verwendet man größerer Tropfen, so ist eine Kühlung nicht unbedingt erforderlich, da die Tropfen erst in der Größenordnung von 10 Minuten verdunsten. In dieser Zeit ist ein Experiment meist schon abgeschlossen. Die Versuche können bei Raumtemperatur durchgeführt werden. Zur Datenerfassung wurde eine CCD-Kamera verwendet, die Bilder und Filme aufzeichnete, die mit einem Videorekorder in einem digitalen Format archiviert wurden. Die gewonnenen Daten stehen somit für eine nochmalige oder spätere Auswertung zur Verfügung.

# Kapitel 4

## Akustofluidisches Ordnen

Mit fortschreitender Miniaturisierung elektronischer Bauteile, werden in naher Zukunft die Strukturgrößen in den Bereich der Größe von Molekülen verkleinert. Wird dieser Punkt eines Tages erreicht, muss man sich neuen Herausforderungen an die Strukturherstellung stellen oder es können direkt Moleküle als Bauteile verwendet werden. Derzeit werden Lösungsansätze verfolgt, wie Moleküle als Bauteile oder als eine Art Baugerüst zur Strukturzeugung verwendet werden können. Dafür werden Methoden benötigt Moleküle gezielt auszurichten.

Die Ausbreitung akustischer Oberflächenwellen auf piezoelektrischen Substraten ist neben der mechanischen Verzerrung des Kristalls von elektrischen Feldern begleitet. Diese Felder können beachtliche Feldstärken von bis zu  $10^7 \frac{\text{V}}{\text{m}}$  erreichen. So gilt für das elektrische Potential an der Oberfläche eines Oberflächenwellenchips

$$\Phi_0 = \sqrt{\alpha_\Phi \lambda I} \quad \text{mit} \quad \alpha_\Phi = \frac{K_{eff}^2}{\pi v \varepsilon_0 (\varepsilon_s + 1)} \quad (4.1)$$

für eine Oberflächenwelle mit Wellenlänge  $\lambda$  und der Linienintensität  $I$  als Quotient der Oberflächenwellenleistung und der Schallpfadbreite. Für die laterale elektrische Feldkomponente gilt

$$E_1(x_3 = 0) = - \left. \frac{\partial \Phi}{\partial x_1} \right|_{x_3=0} = -ik\Phi_0 = -i\sqrt{\alpha_l \frac{I}{\lambda}} \quad \text{mit} \quad \alpha_l = 4\pi^2 \alpha_\Phi \quad . \quad (4.2)$$

Vergleicht man die Feldstärken, die notwendig sind um Moleküle wie Carbonnanotubes [Iijima91] dielektrophoretisch auszurichten [Yamamoto98, Krupke03], so erkennt man, dass die Felder der Oberflächenwelle ausreichend groß sind.

### 4.1 Ordnung durch akustisch induzierten Fluss

Um molekulare Schaltkreise aus Nanotubes (NT's) zu bauen, werden Methoden benötigt, die ein gezieltes Anordnen der NT's erlauben. NT's können mit elektrischen Feldern ausgerichtet werden. Da auf einem Piezoelektrikum die Ausbreitung einer Oberflächenwelle stets

von einem elektrischen Feld begleitet ist, wurde der Einfluss dieses Feldes auf Nanotubes untersucht.

Bewegt man einen Tropfen Lösung mit einer Oberflächenwelle, bleibt von der Lösung kein Rückstand auf der Oberfläche [Strobl01]. Bevor der Versuch unternommen wurde, NT's mit einer Oberflächenwelle auszurichten, wurden 2 Vorversuche unternommen. Eingangs wurde untersucht wie NT's auf einen akustisch getriebenen Fluss reagieren. Diese und die folgenden Versuche mit NT's wurden in Zusammenarbeit mit C. Schäfflein [Schäfflein03] durchgeführt.

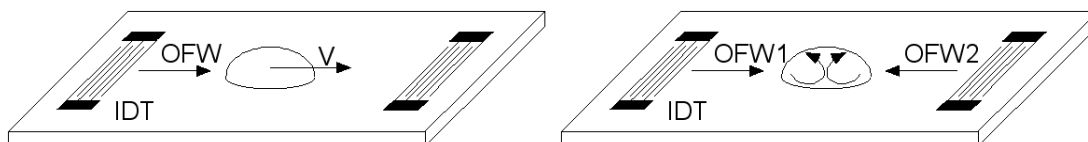


Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau für die Vorversuche zur Ausrichtung von Nanotubes. Im linken Bild wird ein Tropfen durch die Oberflächenwelle geschoben und fährt über die Oberfläche. Im rechten Bild wird auf den Tropfen abwechselnd von je einer Seite eine Oberflächenwelle eingestrahlt, ohne dass sich der Tropfen bewegt.

Dazu wurde auf Oberflächenwellenchips Nanotubelösung pipettiert. Diese Lösung wurde nach folgendem Rezept hergestellt:

- 60 mg NT-Pulver und 60 mg Natriumdodecylsulfat zu 8 ml Reinstwasser geben
- Lösung mit Ultraschall behandeln
- Lösung mit 10000 g zentrifugieren
- Überstand als NT-Lösung entnehmen

Das Tensid Natriumdodecylsulfat bildet um die NT's eine Hülle, ähnlich einer Micelle. Durch die Zugabe dieses Tensids bringt man mehr NT's in Lösung. Der darauf folgende Ultraschallschritt löst die NT's als einzelne Moleküle im Wasser, wobei diese von einer Tensidhülle umgeben sind. Bei der Zentrifugation werden nicht gelöste NT's, die noch in Klumpen vorliegen, fragmentiert und man erhält als Überstand eine NT-Lösung, die man abgießt.

In den beiden Vorversuchen wurden Tropfen einmal mit der Oberflächenwelle über die Probenoberfläche bewegt (s. Abb. 4.1 links). Im anderen Fall mit einer Oberflächenwelle geringer Leistung nur durchmischt (s. Abb. 4.1 rechts). Beide Male wurde der Versuchsaufbau bis knapp über den Taupunkt, der von den Umweltbedingungen des Versuchszeitpunkts abhing, abgekühlt, um die Verdunstung des Tropfens zu verzögern. Nach Durchführung der Versuche wurden die Proben mit Reinstwasser gereinigt um grobe Verunreinigungen, die aus der NT-Lösung stammen, zu entfernen. Die Auswertung beider Versuche zeigte keine Strukturen oder NT's auf dem Chip. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass die mechanische Wechselwirkung dominant gegen andere ist und primär eine Strukturbildung

auf dem Chip verhindert. Für folgende Experimente bedeute dies, dass man zum einen die mechanische Wechselwirkung verringern musste zum anderen keine spontane Strukturbildung allein durch Aufbringen einer NT-Lösung erwartete.

Für die folgenden Experimente galt auch, dass eine Probe, auf der NT-Lösung eintrocknete, nur einmal verwendet wurde, weil an der Oberfläche gebundene NT's sich nicht mehr ablösen lassen. Die einzige Methode NT's von der Oberfläche zu entfernen, war eine Behandlung mit Sauerstoffplasma, in dem die NT's verbrennen.

### 4.1.1 Fluidik im Flüssigkeitsspalt

#### Flüssigkeitsfilme

Eine Oberflächenwelle ist in der Lage eine Flüssigkeit zu beeinflussen (s. Tab. 2.4 auf S. 21). Der Einfluss der Oberflächenwelle äußert sich durch eine interne Strömung im Tropfen oder durch eine Schwerpunktsbewegung des Tropfens. Dabei nutzt man aus, dass Schallwellen bei Ausbreitung in einem fluiden Medium einen Fluss verursachen. Für das System Oberflächenwellenchip und Wasser bedeutet dies, dass man in einem Tropfen eine Strömung verursacht. Für industrie- und forschungsnahe Anwendungszwecke stellt sich aber vielmehr die Frage, ob man Flüssigkeitsfilme<sup>1</sup> mischen kann. Dies ist auch mit akustischen Oberflächenwellen möglich [Strobl01, Guttenberg04]. Dabei treten weitere interessante physikalische Phänomene auf.

Benötigt man einen Flüssigkeitsfilm mit Volumina im 1  $\mu$ l Bereich, so muss man beachten, dass die Oberflächenspannung die dominierende Kraft in der Flüssigkeit ist und sie zum kugelförmigen Tropfen formen will. Daher erzeugt man einen Flüssigkeitsfilm, indem man die Flüssigkeit in einen Spalt gibt. Der Spalt wurde erzeugt, indem man auf die Probe eine Abdeckung aufsetzte. Diese Abdeckung wurde vorher so ausgerichtet, dass die beiden Oberflächen der Probe und der Abdeckung zueinander parallel waren. Die Ausrichtung erfolgte mit Hilfe eines Lasers (s. Abb. 4.2).

Zum Befüllen des Spaltes mit Flüssigkeit wurden Kapillarkräfte benutzt. Brachte man mit einer Pipette einen Tropfen zum Spalt, wurde dieser hineingesaugt. Dabei war darauf zu achten, dass man den Spalt nicht mit zuviel Flüssigkeit befüllte, da diese sonst über den Spalt hinausstand und den Ausgang des Versuchs beeinflusste. War der Spalt befüllt (s. Abb. 4.3), konnte man mit der Eichung des Spaltabstandes beginnen.

Zur Eichung des Abstandes wurde der Aufbau von der Seite betrachtet und die scheinbare Größe eines Gegenstandes mit bekannter Geometrie als Eichgröße verwendet – hierfür war insbesondere die Chipdicke geeignet, weil diese mit einem äußerst kleinen Fehler behaftet war. Der Spaltabstand wurde gegen die Skalierung der Mikrometerschraube der z-Verfahung aufgetragen. Im weiteren Verlauf der Versuche wurde der Aufbau von oben

---

<sup>1</sup>Ein typisches Beispiel hierfür ist ein sog. DNA-Chip. In einer Kleinstmenge Flüssigkeit soll eine bestimmte DNA-Sequenz nachgewiesen. Auf einem Objektträger befinden sich eine Vielzahl von Tests mit einer Mindestgröße. Damit möglichst viele Test durchgeführt werden können, muss die Flüssigkeit eine möglichst große Fläche benetzen. Weshalb die Flüssigkeit mittels einer Abdeckung zu einem Film geformt wird.

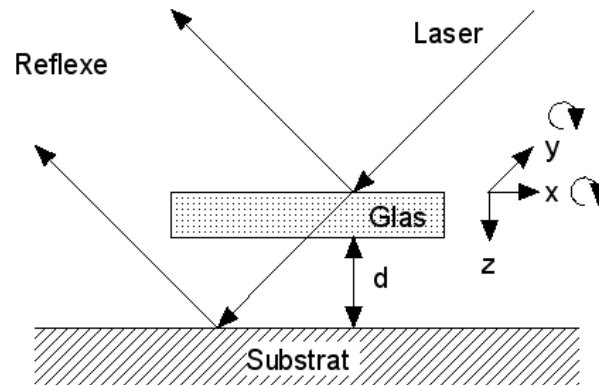


Abbildung 4.2: Um einen Spalt für einen Flüssigkeitsfilm zu erzeugen, dessen Begrenzungen zueinander parallel waren, verwendete man einen Laser. Der Laser leuchtete auf die Probe und die Abdeckung. An den beiden Oberflächen wurde der Laserstrahl teilweise reflektiert. Diese beiden Reflexe werden unter zu Hilfenahme eines weit entfernten Schirms so ausgerichtet, dass die Strahlenverläufe der beiden reflektierten Strahlen parallel waren. Dazu ließ sich die Abdeckung kippen. Um den Spaltabstand und -ort zu bestimmen, konnte die Abdeckung in alle drei Raumrichtungen verfahren werden.

betrachtet und der Spaltabstand reproduzierbar mit der Skala der Mikrometerschraube kontrolliert.

Um den Mischvorgang zu beobachten wurden im Flüssigkeitsfilm kleine Mengen Kügelchen suspendiert und die Strömung in Abhängigkeit vom Spaltabstand betrachtet. Mit Einschalten einer Oberflächenwelle erkannte man deutlich eine Strömung. Die Oberflächenwelle hatte die Frequenz 114 MHz und eine Leistung zwischen 20 dBm und 32 dBm. Verringerte man den Spaltabstand, erkannte man eine Abnahme der Strömungsgeschwindigkeit. Unterschritt der Spaltabstand eine Distanz von 20  $\mu\text{m}$ , ordneten sich die Kügelchen zusätzlich periodisch im Muster einer Stehenden Welle an. Des weiteren gab es auch noch eine Überperiode (s. Abb. 4.4). Neben den beiden Periodizitäten verblieb stets eine Strömung. Kügelchen, die sich im Stehwellenmuster angeordnet hatten, waren nicht völlig ortsfest. Bedingt durch die Strömung konnten sie zur nächsten Knotenlinie gelangen. Dadurch zeigte sich, dass der Ort eines einzelnen Kügelchens durch eine Überlagerung der Kräfte, verursacht durch die Strömung und der Stehwelle, bestimmt wird. Dennoch nahm der Einfluss der Strömung auf die Kügelchen deutlich ab, so dass sie eben in den Knotenlinien für kurze Zeit zum Stillstand kamen.

Ursache für die Stehwellenmuster ist u. a. eine Druckwelle [Rathgeber03]. Diese Druckwelle entsteht beim Eintritt der Oberflächenwelle in die Flüssigkeit, wobei sich diese als longitudinale Schallwelle fortpflanzt. Da der Spaltabstand vergleichbar groß zur Oberflächenwellenlänge war, koppelte die Energie der Oberflächenwelle nicht vollständig in die Flüssigkeit ein, sondern erreichte die Unterseite der Abdeckung und wurde dort auch reflektiert. Dieser Vorgang wiederholte sich mehrere Male (s. Abb. 4.5). Durch diesen Mechanismus kam die Überperiode zustande. Die kleinperiodische Struktur entstand dadurch, dass die

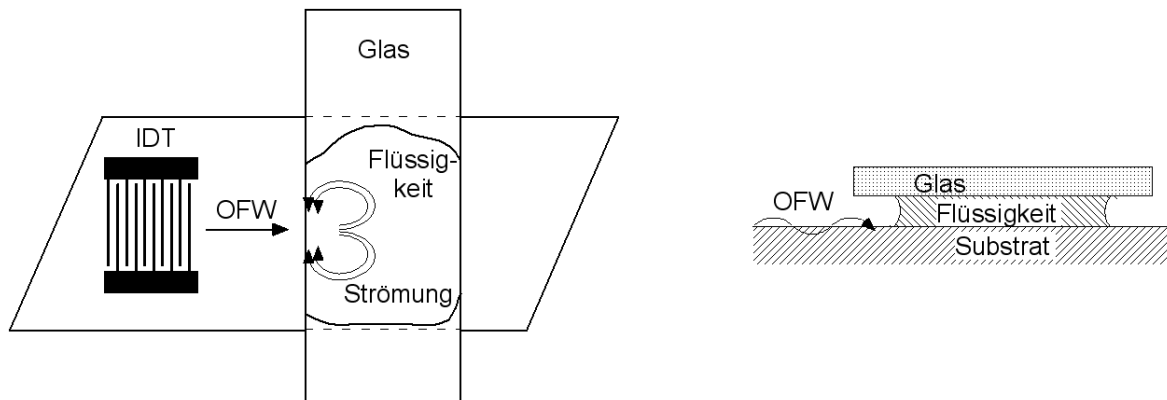


Abbildung 4.3: Links dargestellt sieht man den Versuchsaufbau von oben skizziert. Die Oberflächenwelle trifft auf den Flüssigkeitsfilm, der sich unter der Glasabdeckung befindet. Im rechten Bild ist eine Seitenansicht des Aufbaus dargestellt.

Druckwelle wieder ins Substrat einkoppelte und bedingt durch die Symmetrie vorwärts- und rückwärtslaufende Oberflächenwellen erzeugte, die sich dann gegenseitig zur Stehenden Welle überlagerten. Ungeklärt blieb, warum der Abstand zweier Knotenlinien der Feinstruktur nicht mit der halben Oberflächenwellenlänge korrespondierte.

Auf diesem Wege ist es möglich in dünnen Flüssigkeitsfilmen Stehende Oberflächenwellen zu erzeugen. Ein Phänomen, das bei offenen Tropfen nicht auftritt, weil ein Tropfen Oberflächenwellen zu stark dämpft. Bemerkenswert ist auch, dass zur Erzeugung einer Stehenden Welle nur ein Schallwandler benötigt wird.

### Tropfenaktorik im Spalt

Durch Verdunsten eines Flüssigkeitsfilm ist man in der Lage, äußerst kleine Flüssigkeitsvolumina ( $<100$  pl) herzustellen, für deren Erzeugung sonst ein enormer präparativer oder apparativer Aufwand nötig ist. Dadurch steht eine Methode zur Verfügung, Experimente an Flüssigkeitskleinstmengen herzustellen.

Dafür wurde oben beschriebener Aufbau modifiziert. Auf dem Substrat befanden sich sog. Fluidische Schienen. Diese Schienen waren hydrophile Bereiche des Chips, dessen Oberfläche sonst hydrophob war. Die Schienen befanden sich gänzlich im Schallpfad der Probe, waren  $15\text{ }\mu\text{m}$  breit,  $400\text{ }\mu\text{m}$  lang und hatten einen Mittelpunktsabstand von  $140\text{ }\mu\text{m}$  zueinander. Dieses System wurde dazu entwickelt, Tropfen gezielt über die Oberfläche eines Chips fahren zu lassen. Ohne das Prinzip der Anwendung Fluidischer Schienen kann ein Tropfen mit einer Oberflächenwelle bewegt werden, allerdings ohne Richtungskontrolle. Ohne Fluidische Schienen verlässt der Tropfen an einer zufälligen Stelle den Schallpfad und kann nicht mehr durch die Oberflächenwelle bewegt werden [Strobl01].

In dieser Versuchsanordnung wurde die Probe dazu genutzt, dass der verdunstende Tropfen kleine Tröpfchen in den hydrophilen Schienen hinterlässt. So konnten Tröpfchen mit Volumina im  $10\text{ pl}$  bis  $100\text{ pl}$ -Bereich erzeugt werden. Zur einfacheren Beobachtung



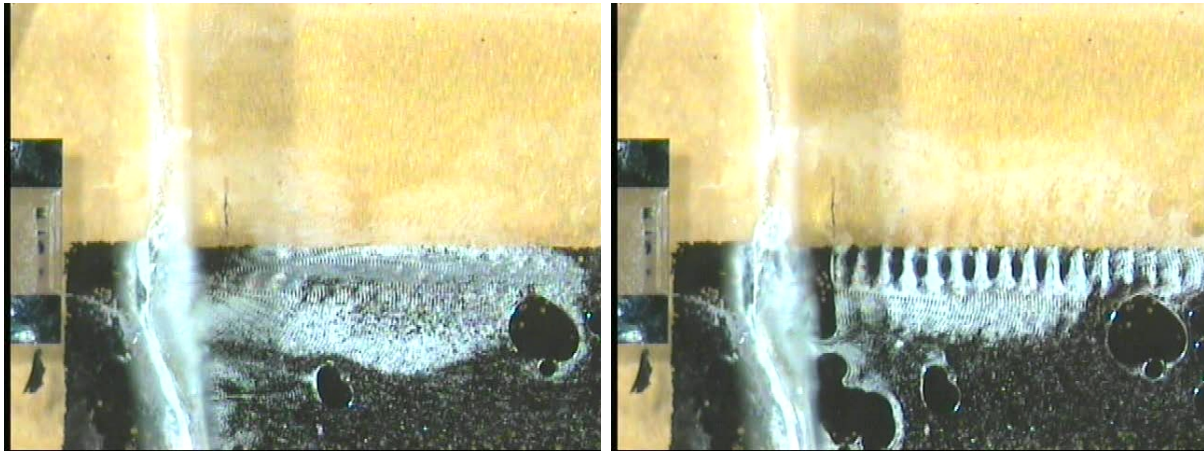


Abbildung 4.4: In einem dünnen Flüssigkeitsfilm überlagerten sich die Muster einer Strömung und der Stehenden Welle. Im linken Bild sieht man die Anordnung der Kügelchen im Muster einer Stehenden Welle. Der Abstand zweier Knotenlinien bestimmte sich zu  $(19,4 \pm 0,9) \mu\text{m}$ . Zusätzlich konnte man dieses Bild, wie rechts gezeigt, mit einer Überperiode modulieren, deren Knotenlinien einen Abstand von  $(135 \pm 1) \mu\text{m}$  hatten. Eine Hälfte des Schallpfads war metallisiert, um den Farbkontrast zu erhöhen und um sicherzustellen, dass die Ergebnisse auf der mechanischen Wechselwirkung basieren. Bei beiden Bildern sah man durch die Abdeckung aus Glas hindurch. Der weiße Strich rechts vom Schallwandler stammte von der Kante des Glases. Die Bilder stammen aus dem Film [dunnSchicht\\_Kugeln.mpg](#).

der Tröpfchen wurden diese mit einem Fluoreszenzfarbstoff gefärbt. Der Fluoreszenzfarbstoff wurde mit einer blauen Leuchtdiode zur Fluoreszenz angeregt. Mit einem Kantenfilter wurde das Anregungslicht herausgefiltert, während der Filter das Fluoreszenzlicht transmittieren ließ. Das Fluoreszenzlicht verdeutlichte den Ort des Tröpfchens, weil man ein helles Signal gegenüber dem dunklen Hintergrund hatte. Versuchte man nun die Tropfen mit der Oberflächenwelle zu bewegen erhielt man ein Ergebnis, das der bisherigen Erfahrung widersprach. Die Oberflächenwelle hatte die Frequenz 114 MHz und die Leistung 30 dBm. Der Spalt hatte die Größe  $20 \mu\text{m}$ . Begann ein Tropfen zu laufen, so bewegte er sich entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle. Befanden sich mehrere Tropfen in der Schiene, so schattierten sich diese nicht und es konnten mehrere hintereinander liegende Tropfen bewegt werden. Diese beiden Befunde lassen sich bei großen Tropfen in (ca. 100 nl) in halboffener Geometrie nicht beobachten. Liegen zwei Tropfen hintereinander im Schallpfad, so dämpft der Tropfen, der näher am Schallwandler liegt, die Oberflächenwelle gänzlich weg [Rathgeber00]. Der zweite Tropfen wird von der Oberflächenwelle nicht beeinflusst. Zusätzlich bewegt sich ein großer Tropfen unter Einfluss einer Oberflächenwelle mit der Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle.

Das Verhalten der kleinen Tröpfchen ähnelt sehr dem kleiner Festkörper, die mit einer Oberflächenwelle bewegt werden [Rathgeber00]. Auch zähe Flüssigkeiten können sich teilweise ähnlich wie Festkörper verhalten und zeigen ein Übergangsverhalten zwischen



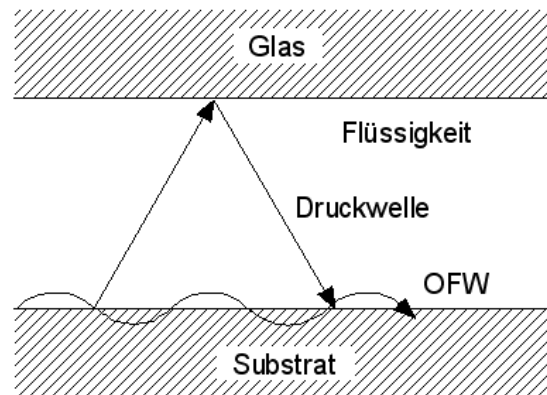


Abbildung 4.5: In einem dünnen Flüssigkeitsfilm koppelt die Oberflächenwelle ebenso in die Flüssigkeit ein, wie sie es bei einem halboffenen Tropfen tut. Dies geschieht aber nicht vollständig. Ein Teil der Energie wird an der Unterseite der Abdeckung reflektiert und kommt zurück zum Substrat. Dieser Vorgang wiederholt sich auch mehrmals hintereinander.

Festkörpern und Flüssigkeiten [Strobl01]. Dünne Filme aus zähen Flüssigkeiten, wie z.B. Glycerin, bewegen sich entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle. Dicke Filme hingegen bewegen sich mit der Ausbreitungsrichtung. Die kleinen Tropfen werden wie Festkörper aufgrund der retrograden Bewegung der Oberflächenatome des Substrats in die entgegengesetzte Richtung bewegt. Die geringen Ausdehnungen der Tropfen in  $x_3$ -Richtung war dafür der Grund. Ein ähnlicher Grund war es auch, dass sich Tropfen bewegen ließen, die hintereinander im Schallpfad lagen. Zum einen benetzten sie nur eine kleine Fläche, weshalb die Dämpfung der Oberflächenwelle nicht so ausgeprägt war, zum anderen konnte die Oberflächenwelle wegen der geringen Breite der Tropfen in  $x_2$ -Richtung wieder in den Schattenbereich eindringen, weil der Schallpfad einer Oberflächenwelle mindestens so breit ist wie ihre Wellenlänge [Mueller04]. Dies ist hier möglich, weil die Tröpfchen in  $x_2$ -Richtung nur  $15\text{ }\mu\text{m}$  breit waren, die Wellenlänge der Oberflächenwelle aber  $35\text{ }\mu\text{m}$  betrug.

Die Versuche zeigten, dass eine akustisch getriebene Mikrofluidik mit Deckel aufgebaut werden kann. Bei Spaltgrößen, die vergleichbar mit der Oberflächenwellenlänge sind treten weitere Effekte. Es zeigte sich, dass die Transportrichtung einer Flüssigkeit neben der Viskosität und Frequenz [Strobl01] auch eine Funktion der Spaltgröße ist.

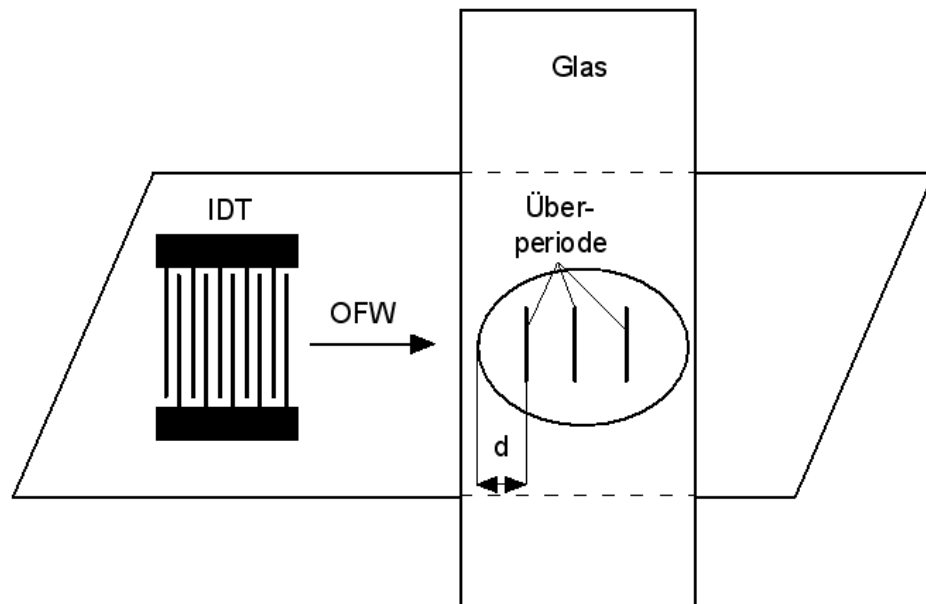


Abbildung 4.6: Trocknet der Flüssigkeitsfilm ein, verändert der Rand des Flüssigkeitsfilms seine Position. Damit verbunden ist eine Änderung der Orte der Knotenlinien der Überperiode. Bei dieser Ortsänderung bleibt der Abstand der einzelnen Knotenlinien und der Abstand  $d$  der ersten Knotenlinie zum Tropfenrand konstant.

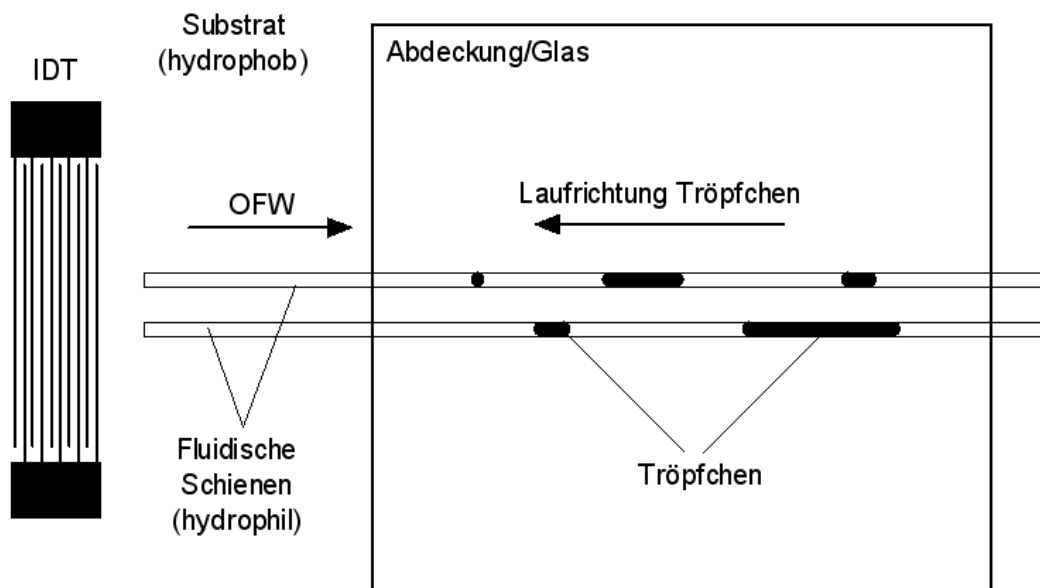


Abbildung 4.7: Aufbau und Ergebnis der Untersuchung des Verhaltens kleinster Tropfen in einem Spalt. Tropfen, die unter einem Spalt geschoben werden verhalten sich völlig anders als halboffene Tropfen. Sie bewegen sich entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle. Zu dieser Skizze siehe auch den Film [dunnSchicht\\_Tropfen\\_rueckw.mpg](#)

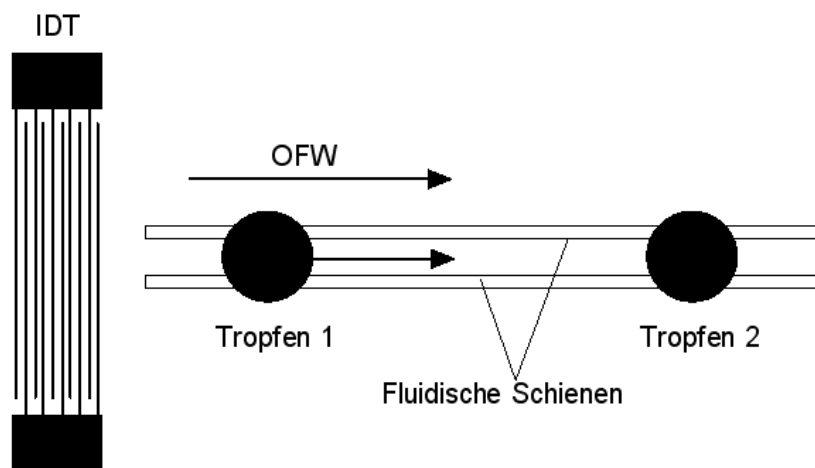


Abbildung 4.8: Befinden sich zwei Tropfen im Schallpfad, so wird von Tropfen 1 die gesamte Schallenergie aufgenommen bzw. absorbiert. Tropfen 2 erfährt keinen Einfluss durch die Oberflächenwelle, nur Tropfen 1 wird durch die Oberflächenwelle gemischt bzw. transportiert.

### 4.1.2 Nanotubes unter Oberflächenwellen-Einfluss

Bei Verwendung von Carbonnanotubes (NT's) als elektrische Bauteile oder Leitung in der Molekularelektronik werden Methoden benötigt NT's gezielt auszurichten. Will man gelöste NT's mit einer Oberflächenwelle ausrichten, so muss man dafür sorgen, dass die mechanische Wechselwirkung zwischen Oberflächenwelle und Lösemittel – hier Wasser mit Tensid – die erzeugten Strukturen nicht zerstört. Um dies zu erreichen, wurde der Volumenfluss der Flüssigkeit verringert, indem man sie in einen Spalt einbrachte. Zusätzlich kann man den Effekt ausnutzen, dass sich in einem flüssigkeitsgefüllten Spalt Stehende Wellen bilden können.

Zur Versuchsdurchführung wurde eine Anordnung, wie in den Abbildungen 4.2 auf Seite 56 und 4.3 auf Seite 57 gezeigt, aufgebaut. Die NT-Lösung befand sich in einem Spalt, der von einer Oberflächenwellenprobe und einer Glasabdeckung begrenzt war. Die Oberflächen der beiden Begrenzungen waren zueinander parallel. Der Aufbau wurde abgekühlt um ein zu schnelles Verdunsten der NT-Lösung zu verhindern aber nicht vollständig zu unterbinden. Bei der Durchführung wurde eine Oberflächenwelle mit einer Leistung zwischen  $P=20$  dBm und  $P=30$  dBm erzeugt, die Frequenz betrug 114 MHz. Die Oberflächenwelle wirkte 30 Minuten auf den Flüssigkeitsfilm ein, der in der Zeitdauer des Versuchs langsam verdunstete. Nach Ablauf der Zeit wurde die Probe aus dem Aufbau entnommen, mit Reinstwasser gereinigt um grobe Verschmutzungen zu entfernen und anschließend mit einem AFM untersucht. Bei der Untersuchung der Probenoberfläche mit dem AFM erhielt man Bilder, wie in Abb. 4.9 zu sehen.

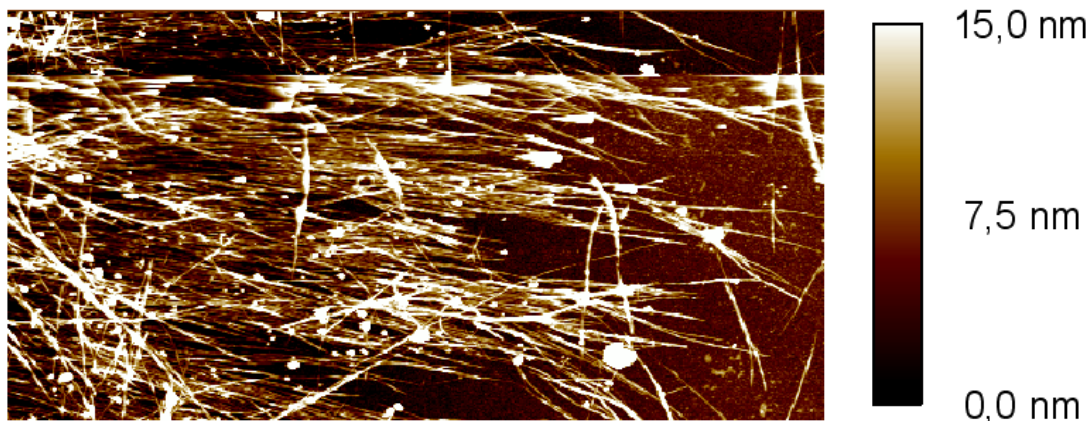


Abbildung 4.9: Das AFM-Bild zeigt den typischen Ausgang eines Experiments bei dem eine NT-Lösung in einem flüssigkeitsgefüllten Spalt mit der Oberflächenwelle ausgerichtet wurden. Die Nanotubes weisen alle Höhen von 4-6 nm auf, ein Wert der für die verwendeten Multiwall-Nanotubes zu erwarten war. Die Oberflächenwelle lief in diesem Bild von der linken zur rechten Seite. Die Lage der NT's weist eine Vorzugsrichtung auf. Die Kantenlänge des Bildes beträgt  $5\text{ }\mu\text{m}$  mal  $2,5\text{ }\mu\text{m}$ . Die Höheninformation ist in rechtsstehender Skala dargestellt.

NT's, die sich in einem Flüssigkeitsfilm befanden und der Oberflächenwelle ausgesetzt

wurden, wiesen bei nicht zu großer anfänglicher Konzentration nach Versuchsdurchführung eine Vorzugsrichtung ihrer Lage auf. War die Konzentration der NT's anfangs zu groß verklebten diese miteinander und fielen als Konglomerat auf die Oberfläche aus, wie man in Abb. 4.9 am linken Bildrand sehen kann. Bei geringerer Dichte ordneten sich die NT's in einem bestimmten Winkel zur Laufrichtung der Oberflächenwelle aus. Dabei ordneten sich nur die NT's aus, die Kontakt zur Oberfläche hatten. Lagen NT's auf anderen NT's, wurden diese nicht ausgerichtet, man sieht Beispiele dafür in der Bildmitte. Bei sehr geringer Konzentration, so dass einzelne NT's auf dem Substrat lagen, wurden nahezu alle NT's ausgerichtet. Ausgefallene NT's auf der Abdeckung wiesen keine besondere Ordnung auf. Auffällig war, dass die NT's nicht alle mit einem Winkel im gleichen Drehsinn da lagen, sondern auch viel mit dem gleichen Winkel im negativen Drehsinn (s. Abb. 4.10). Der Winkel lag dabei zwischen  $\pm 25^\circ$  und  $\pm 45^\circ$ . Es sieht daher aus, dass die NT's entlang einer resultierenden Kraft lagen. Die Anordnung der NT's auf der Oberfläche erwies sich als unabhängig von der y-Position auf der Probe. Im Laufe der Versuchsreihe zeigte es sich, dass die Versuchsdauer und angelegte HF-Leistung auf 10 Minuten bzw. 10 dBm reduziert werden konnten, ohne dass es eine Ergebnisveränderung gab. Auch die Verwendung von Single- und Multiwall-NT's zeigte keinen Unterschied. Dagegen war die Spaltgröße von Bedeutung. War der Spalt größer als die Wellenlänge, so gelang es nicht mehr die NT's auszurichten.

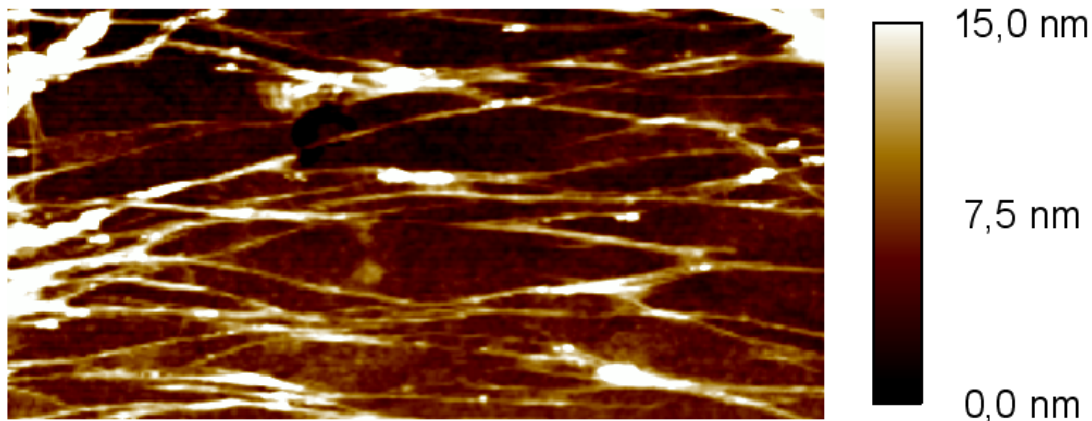


Abbildung 4.10: Werden NT's mit einer Oberflächenwelle im Rayleighwellenmodus ausgerichtet ordnen sie sich in zwei verschiedenen Winkeln, die symmetrisch zur Propagationsrichtung der Oberflächenwelle liegen. Die Kantenlänge des Bildes beträgt  $5\text{ }\mu\text{m}$  mal  $2,5\text{ }\mu\text{m}$ . Die Höheninformation ist in rechtsstehender Skala dargestellt.

Metallisierte man die Oberfläche des Oberflächenwellenchips, was einen Kurzschluss der elektrischen Felder bedeutet, beobachtete man keine Ordnung der Nanotubes. Einzig die mechanische Wechselwirkung zwischen NT-Lösung und Oberflächenwelle war wirksam. Das elektrische Feld gehört daher zu den notwendigen Elementen, will man den Mechanismus des Ausrichtens der NT's beschreiben (s. dazu Abschnitt 4.3 auf S. 65).

## 4.2 Scherwellen gestütztes Ausrichten

Werden zum Ausrichten von Carbonnanotubes Oberflächenwellen der Rayleighmode verwendet, so hat man stets eine dominante Wechselwirkung zwischen der Flüssigkeit der NT-Lösung und der Oberflächenwelle. Will man eine mögliche Auswirkung des elektrischen Feldes untersuchen, muss die mechanische Wechselwirkung verringern. Dies kann man sehr effektiv mit Scherwellen erreichen. Dazu muss nur das Substrat ausgetauscht werden.

Scherwellen können sich nicht in Flüssigkeiten ausbreiten (s. dazu S. 17). Daher wurde eine mechanische Wechselwirkung zwischen der Scherwelle und der Flüssigkeit nicht erwartet und es sollte nur der alleinige Einfluss des elektrischen Feldes auf das System studiert werden können. Dazu wurde ein einfacher Vorversuch durchgeführt. Zuerst wurde untersucht, welchen Einfluss eine Scherwelle, erzeugt auf 36°-rot  $\text{LiTaO}_3$ , auf eine Flüssigkeit auf der Oberfläche eines Scherwellenbauteil hat (Ergebnis s. Abb. 4.1). Ein Tropfen, in dem Kügelchen suspendiert waren, wurde auf die Oberfläche pipettiert. Mit Anlegen einer HF-Spannung der Leistung  $P=30$  dBm und der Frequenz  $f=225,5$  MHz erzeugte man eine Scherwelle. Die Kügelchen begannen sich daraufhin aufgrund einer Strömung im Inneren des Tropfens zu bewegen. Es entstand ein Strömungsbild das dem aus Experimenten mit Rayleighwellen entsprach. Anders als bei Rayleighwellen wurde aber eine deutlich höhere Leistung benötigt, um eine Strömung zu erzeugen. Die Differenz betrug etwa 10 dB. Dieses Ergebnis steht in Widerspruch zur bisher geltenden allgemeinen Meinung, dass mit Scherwellen keine Fluidik aufgebaut werden kann. Das Experiment zeigte, dass es möglich ist Scherwellen für die Fluidik einzusetzen. Darauf soll im Kap. 5.2 weiter eingegangen werden. Obwohl auf Scherwellenbauteilen doch eine erkennbare Strömung vorhanden ist, konnten diese dennoch als Testsystem verwendet werden, weil sie im Vergleich zu Rayleighwellen bei gleichbleibender Leistung deutlich geringere mechanische Wirkung zeigen, das elektrische Feld aber dasselbe bleibt.

Führt man mit Scherwellen Experimente zur Ausrichtung von Nanotubes aus und verwendet man den Aufbau, wie in Abb. 4.2 skizziert und lässt die Voraussetzungen des Experiments im Vergleich zu Rayleighwellenexperimenten unverändert, erhält man ein unterschiedliches Resultat. Bei Auswertung der AFM-Aufnahmen ordnen sich die NT's nun parallel zur Ausbreitungsrichtung der Scherwellen an (s. Abb. 4.11).

Da der Einfluss der mechanischen Wechselwirkung stark verringert ist, sieht man auf den Bildern, den Einfluss der elektrischen Wechselwirkung. Da die NT's durch die Scherwellen parallel zur Ausbreitungsrichtung ausgerichtet wurden, muss der Winkel, der bei Verwendung von Rayleighwellen entstand, durch den mechanischen Einfluss entstanden sein. Der mechanische Einfluss wurde dabei durch die Strömung vermittelt. Dies passt zur Vorstellung, dass sich die NT's entlang einer resultierenden Kraft ausrichten. Ohne Abdeckung zeigte sich keine Ordnung der NT's.

Bei Betrachtung der Probenoberfläche mit einem Mikroskop sah man ein zweites interessantes Resultat. Der Rest der verdunsteten NT-Lösung hinterließ einen schwarzen Rückstand auf der Oberfläche. In diesem Rückstand konnte man sehr deutlich das ausgefallene Muster einer Stehenden Welle wiedererkennen (Abb. 4.12). Nicht entscheidend war, ob die zuvor



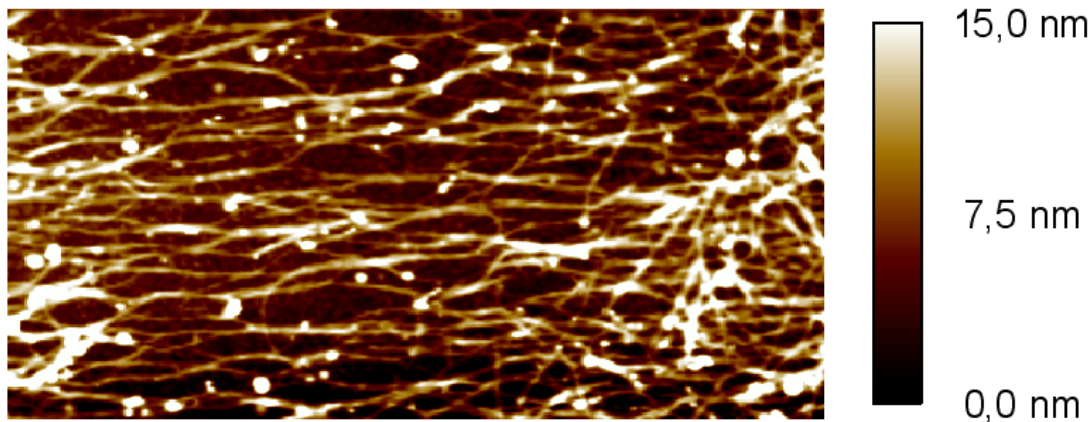


Abbildung 4.11: Mit Hilfe einer Scherwelle ausgerichtete NT's werden parallel zur Ausbreitungsrichtung der Scherwelle ausgerichtet. Die Scherwelle lief in diesem Bild von links nach rechts. Die Kantenlänge des Bildes beträgt  $5\text{ }\mu\text{m}$  mal  $2,5\text{ }\mu\text{m}$ . Die Höheninformation ist in rechtsstehender Skala dargestellt.

benetzte Stelle unter dem Glas war oder nicht. Überall auf dem Substrat, wo der Film den Schallpfad benetzte war dieses Muster zu sehen.

Der Abstand der einzelnen Linien des Stehwellenmuster entsprach hier genau der Fingerperiodizität. Um Aufnahmen wie Abb. 4.11 zu erhalten musste man die AFM-Nadel genau in den hellen Bereichen des Musters positionieren. Die Stehwelle entstand hier durch Reflektion am gegenüberliegenden Schallwandler, von denen sich zwei auf der Probe befanden und in einer Geometrie zur Transmissionsmessung ausgerichtet waren. Da Scherwellen von Flüssigkeiten nicht gedämpft werden, konnte diese auch über die benetzte Fläche propagieren und erreichte den gegenüberliegenden Schallwandler, der nach dem Sender-Empfänger-Prinzip die Welle reflektierte. Durch Überlagerung der vor- und rücklaufenden Welle entstand eine Stehende Welle.

Scherwellen erwiesen sich als gute Testsysteme um Vergleiche mit Rayleighwellen anzustellen. Die Erzeugung Stehender Wellen zeigte sich als besonders einfach durchführbar. Neu war der Effekt, dass sie auch im Bereich der Flüssigkeitsaktorik eingesetzt werden können.

### 4.3 Modellbildung zur Nanotubeausrichtung

NT's können mit akustischen Wellen auf Festkörperoberflächen ausgerichtet werden. Ein Modell, das erklären will, wie dies geschieht, muss die Ergebnisse des Experiments konsistent erklären. Die Ergebnisse sind zusammengefasst:

1. keine Strukturbildung bei alleiniger Einwirkung einer Strömung
2. Strukturbildung nur nahe der Oberfläche
3. keine Strukturbildung auf metallisierten Flächen

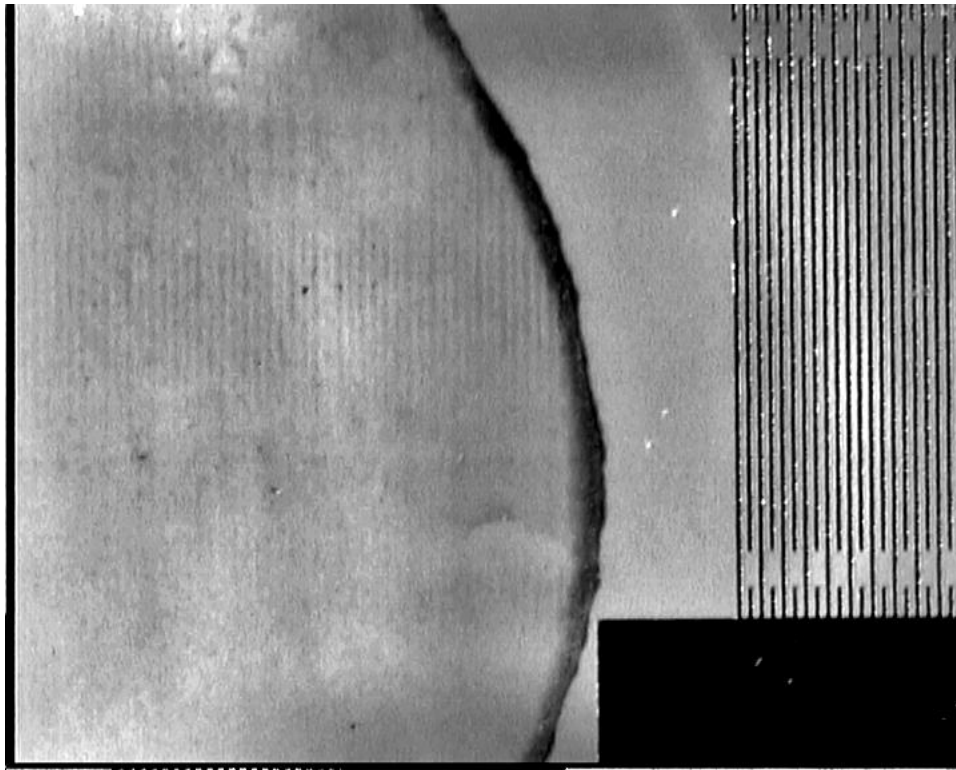


Abbildung 4.12: Nach dem Verdunsten der NT-Lösung verblieb auf dem Scherwellensubstrat ein Stehwellenmuster zurück. Rechts im Bild sieht man einen der beiden Schallwandler, die auf der Probenoberfläche waren. In dieser Aufnahme lassen sich auch die Fingerperiodizität und Linienabstände des Stehwellenbildes sehr schön vergleichen.



## 4. zwei Vorzugsrichtungen bei Verwendung von Rayleighwellen

- (a) Die Vorzugsrichtung fällt nicht mit der Ausbreitungsrichtung der Rayleighwelle zusammen.
  - (b) Die beiden Vorzugsrichtungen haben vom Betrag her den gleichen Winkel zur Ausbreitungsrichtung und unterscheiden sich nur durch das Vorzeichen.
5. Bei Verwendung von Scherwellen gibt es eine Vorzugsrichtung entlang der Ausbreitungsrichtung der Scherwelle.

Punkt 1 und 3 bedeuten, dass es zwei Wechselwirkungsarten gibt, eine elektrische und eine mechanische. Diese Wechselwirkungen addieren sich zu einer resultierenden, womit Punkt 4(a) erfüllt wird. Das elektrische Feld einer Oberflächenwelle wirkt nur nahe dem Substrat. Dies genügt Punkt 2. Punkt 5 zeigt die Wirkung des elektrischen Feldes auf. Für Punkt 4(b) muss man das Modell so gestalten, dass es eine Symmetrie zulässt. Nach Yamamoto [Yamamoto98] wird in Nanotubes in einem elektrischen Wechselfeld ein Dipolmoment induziert. Körper mit elektrischen Dipolmoment  $\mathbf{p}$  erfahren in einem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  mit nicht verschwindendem Gradienten  $\nabla \mathbf{E}$  eine Kraft

$$\mathbf{F} = -\nabla W = \nabla (\mathbf{p} \mathbf{E}) \quad . \quad (4.3)$$

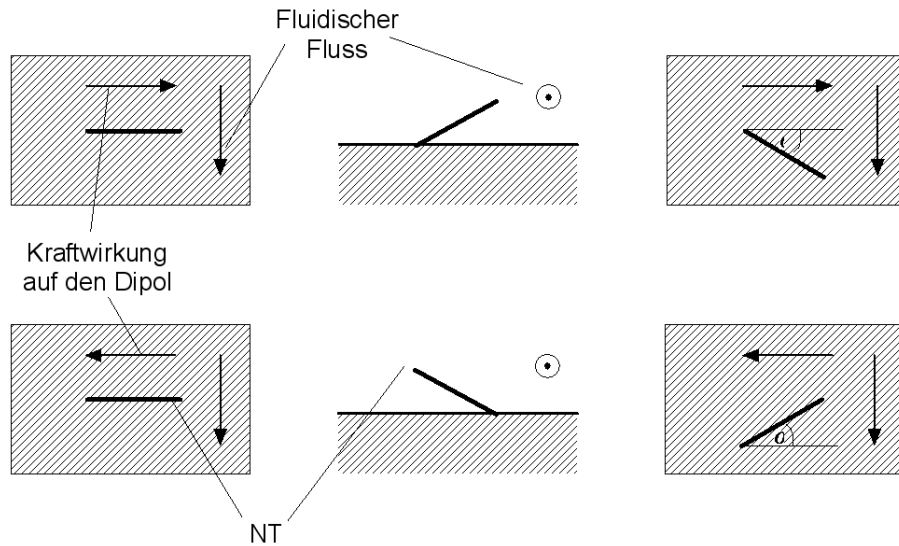


Abbildung 4.13: In den beiden Reihen zeigen die ersten beiden Bilder in Draufsicht und Seitenansicht die Anfangssituation nach dem Aufsetzen des NT's. Der Fluidische Fluss verursacht eine weitere Kraft, die das Tube wie einen Wetterhahn im Wind dreht. Welchen Winkel der Drehsinn des ausgerichteten NT's hat, entscheidet sich dadurch, mit welchem Ende das NT aufsetzt. Dadurch entstehen bei sonst gleichen Bedingungen zwei Winkel wie man in den beiden rechten Bildern sehen kann.

Diese resultierende Kraft zieht den Dipol in Richtung der höheren Feldstärke. Das elektrische Feld einer Oberflächenwelle sieht im oberen Halbraum  $x_3 > 0$  aus wie

$$\mathbf{E} = E_0 \cdot e^{-kx_3} e^{i(kx_1 - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} -i \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

(Berechnung s. Anhang A auf S. 128) und besitzt einen Gradienten

$$\nabla \mathbf{E} = \left( \frac{\partial E_i}{\partial x_j} \right)_{i,j} = k E_0 e^{-kx_3} e^{i(kx_1 - \omega t)} \begin{pmatrix} 1 & 0 & i \\ 0 & 0 & 0 \\ i & 0 & -1 \end{pmatrix} \neq 0 \quad (4.5)$$

der im Allgemeinen nicht verschwindet (ein weiteres Experiment zum elektrischen Feld im oberen Halbraum s. Abschnitt 5.3 auf Seite 80). Ein NT erfährt daher im Feld einer Oberflächenwelle eine Kraft

$$\mathbf{F} = \nabla (\mathbf{p} \mathbf{E}) = \nabla \left[ (p_1^* \ p_2^* \ p_3^*) \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} \right] \stackrel{|\mathbf{p}| \sim |\mathbf{E}|}{\sim} \nabla (|\mathbf{E}|^2) = 4k E_0^2 e^{-2kx_3} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}, \quad (4.6)$$

die es zur Oberfläche zieht. An der Oberfläche bindet das NT mit einem Ende und erfährt auch einen Strömungswiderstand. Je nachdem wie das NT aufsetzt wird durch die Aufsetzsituation vorgegeben, in welche Richtung die Ausrichtung erfolgt. Ein Nanotube wird zum Substrat gezogen und bindet mit einem Ende an (s. Abb. 4.13). An einer bestimmten Stelle des Substrats bleibt die Richtung des Fluidischen Flusses immer gleich. Die Wirkung der beiden Drehmomente, verursacht durch den Strömungswiderstand und dem elektrischen Feld auf den Dipol, lenkt das Nanotube in einem bestimmten Winkel zur Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle aus. Der Aufsetzpunkt entscheidet dabei über den Drehsinn des Winkels. Da diese Situation zwei Winkel zulässt, die auch symmetrisch sind, ist damit auch Punkt 4(b) erklärt.

## 4.4 Flüssigkristalle unter Oberflächenwellen-Einfluss

Eine Oberflächenwelle ist in der Lage Carbonnanotubes durch Wechselwirkung mit mechanischen und elektrischen Kräften auszurichten (s. Abschnitt 4.3). Nach diesem Modell ist das elektrische Feld einer Oberflächenwelle in der Lage Moleküle mit permanenten elektrischen Dipolmoment auszurichten. Flüssigkristalle sind eine Molekülklasse, die ein permanentes Dipolmoment besitzen und sich durch ein äußeres elektrisches Feld ausrichten lassen. Sie besitzen eine flüssige Phase, in der die Moleküle des Kristalls eine Fernordnung aufweisen. Diese Eigenschaften werden in jeder Flüssigkristallanzeige genutzt. Da auf einem piezoelektrischen Substrat eine Oberflächenwelle stets von elektrischen Feldern begleitet wird, wurde untersucht, ob sich die Moleküle eines Flüssigkristalls von einer Oberflächenwelle beeinflussen lassen und ob der Verlauf des Schallpfads untersucht werden kann.

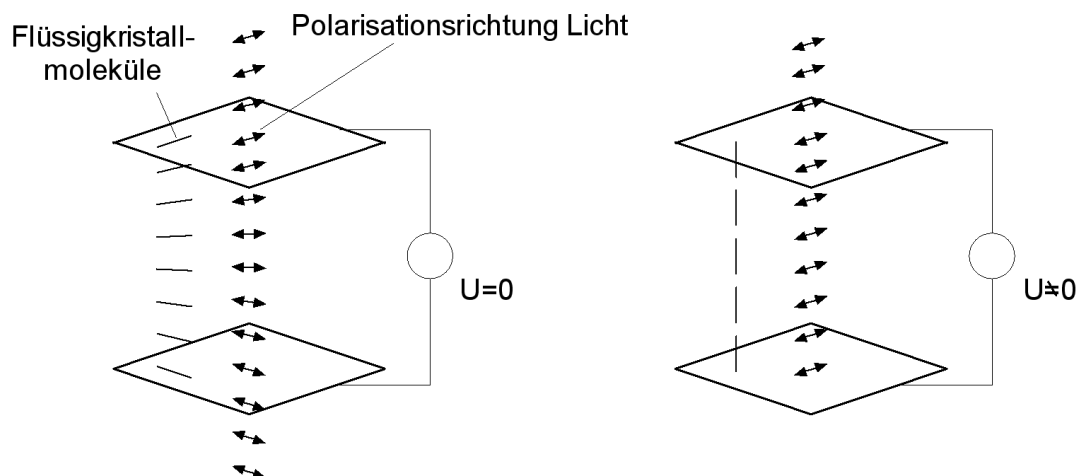


Abbildung 4.14: In einer Flüssigkristallanzeige befindet sich eine dünne Schicht Flüssigkristall zwischen zwei gekreuzten Polarisatoren. Wird wie im linken Bild keine Spannung zwischen den Elektroden angelegt, drehen die Flüssigkristallmoleküle die Polarisationssebene des Lichts um  $90^\circ$  und das Licht transmittiert durch die Zelle. Legt man wie im rechten Bild eine Spannung an, werden die Moleküle so ausgerichtet, dass sie die Polarisationssebene nicht mehr drehen. Das Licht kann nicht mehr transmittieren. Das hier dargestellte Arbeitsprinzip entspricht dem einer TN-Zelle [Schadt71].

In Flüssigkristallanzeigen oder LCD-Displays nutzt man aus, dass Flüssigkristalle die Polarisationssebene von Licht drehen können. Dabei befindet sich eine dünne Schicht aus Flüssigkristall zwischen zwei gekreuzten Polarisatoren (s. Abb 4.14). Mit ihrer natürlichen oder aufgezwungenen Ordnung drehen sie die Polarisationssebene des Lichts, so dass dieses den zweiten Polarisator passieren kann. Mit einem externen elektrischen Feld werden die Flüssigkristallmoleküle neu angeordnet und die Polarisationssebene wird nicht mehr gedreht. Das Licht kann den zweiten Polarisator nicht passieren.

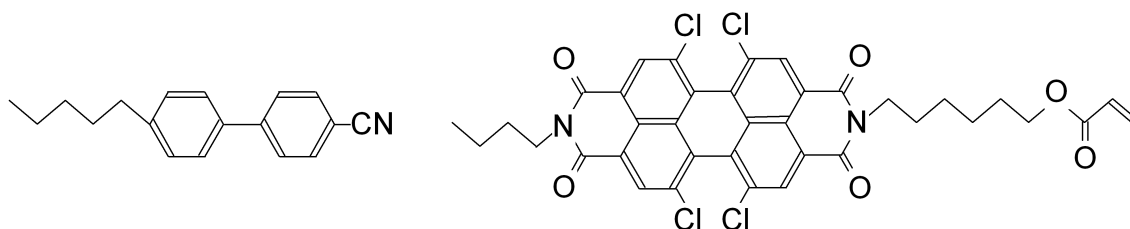


Abbildung 4.15: Im linken Bild sieht man die Strukturformel des Flüssigkristallmoleküls 5CB [Hanemann95]. Das rechte Bild stellt ein Farbstoffmolekül dar, das dem Flüssigkristall beigemischt ist, um später seine Orientierung messen zu können. Der Schmelzpunkt des Flüssigkristalls liegt bei  $23^\circ\text{C}$  und der Klärpunkt bei  $35^\circ\text{C}$ . Seine Masse beträgt  $249,35\text{ u}$ .

Zur Durchführung der folgenden Versuche wurde von Prof. Dr. H.W. Schmidt, Uni

Bayreuth, der Flüssigkristall 5CB (s. Abb. 4.15) zur Verfügung gestellt. Zur Beobachtung der Versuche wurde der Aufbau für den Oberflächenwellenmessplatz in ein Fluoreszenzmikroskop (s. dazu auch Abb. 4.16) integriert. Der zum Flüssigkristall beigemengte Farbstoff wurde durch UV-Licht zur Fluoreszenz angeregt. Mit einem Filter wurde das Anregungslicht herausgefiltert und man beobachtete nur das emittierte Fluoreszenzlicht des Farbstoffs. Die Orientierung der Flüssigkristallmoleküle wurde mit einer Messung der Polarisation des Emissionslichts untersucht. Im Falle einer Polarisierung hatte man den Nachweis einer Orientierung der Moleküle durch das elektrische Feld.

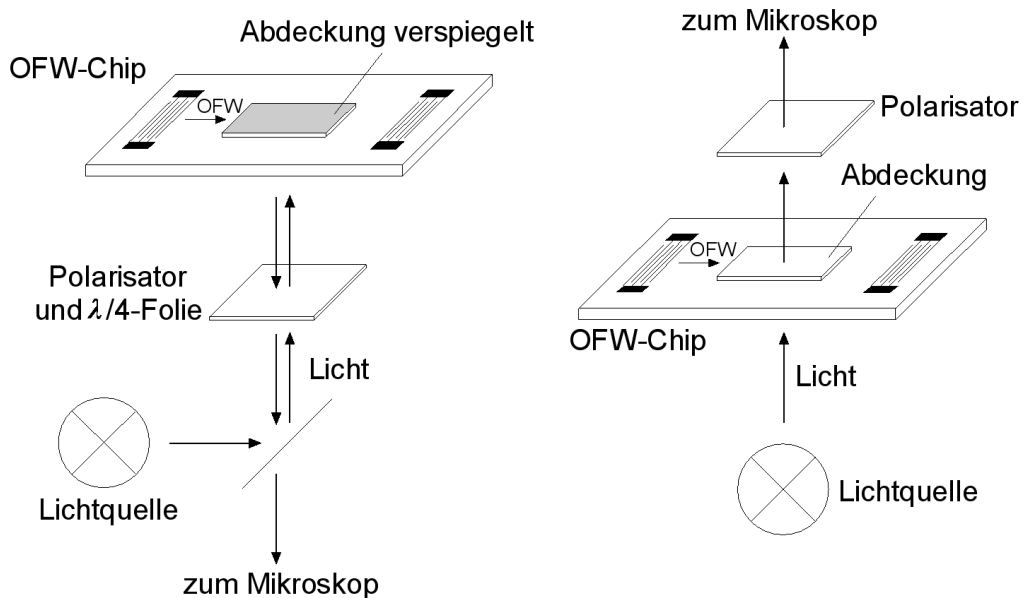


Abbildung 4.16: Prinzip zum Nachweis einer Orientierung der Flüssigkristallmoleküle unter Oberflächenwelle-Einfluss. Links dargestellt der Aufbau ähnlich zu Flüssigkristallanzeigen, reflektives Display oder auch r-TN-Zelle, für Taschenrechner oder Fahrradachse, der Verwendung bei Nutzung eines Auflichtmikroskops findet. Die rückseitig verspiegelte Abdeckung reflektiert das emittierte Licht. Rechts abgebildet der Aufbau ähnlich einer IPS-Zelle [Oh-e95]. Dieser kann in einem Fluoreszenzmikroskop mit Durchlichtoption eingebaut werden.

Auf der Oberflächenwellenprobe befand sich eine Glasabdeckung, in die ein etwa 10  $\mu\text{m}$  tiefer Graben geätzt wurde. Die Abdeckung wurde mit dem Graben nach unten auf die Probe gelegt. Der Graben war über dem Schallpfad. Im Spalt befand sich bei der Versuchsdurchführung der Flüssigkristall. Der Spalt hatte die Funktion die Ausbildung Stehender Wellen zu ermöglichen. Schaltete man die Oberflächenwelle ein, sah man ohne Polarisator die mechanische Wirkung der Oberflächenwelle auf den Flüssigkristall. Die Oberflächenwelle hatte eine Leistung von 7 dBm und eine Frequenz von 147,5 MHz. Das Chipsubstrat war beidseitig poliert und durchsichtig. Die mechanische Wirkung der Oberflächenwelle (s. Abb. 4.17) verursachte im Flüssigkristall eine Strömung, die man sehr gut als wandernde Schlieren erkennen konnte, und das Streifenmuster einer Stehenden Welle. Ließ man eine

Oberflächenwelle zu lange auf den Flüssigkristalle wirken, kam es vor, dass beide Muster verschwanden. Dieser Vorgang nahm seinen Anfang im Zentrum des Fokus des Mikroskop. In diesem Moment wurde der Flüssigkristall durch die Oberflächenwelle über den Klärpunkt hinaus erwärmt und ging in die flüssige Phase ohne Fernordnung über. In der flüssigen Phase zeigt ein Flüssigkristall keine polarisierende Wirkung mehr. Schaltete man die Oberflächenwelle aus, konnte man den Phasenübergang zurück in die nematische Phase beobachten, der dem Vorgang des Gefrierens ähnelt.

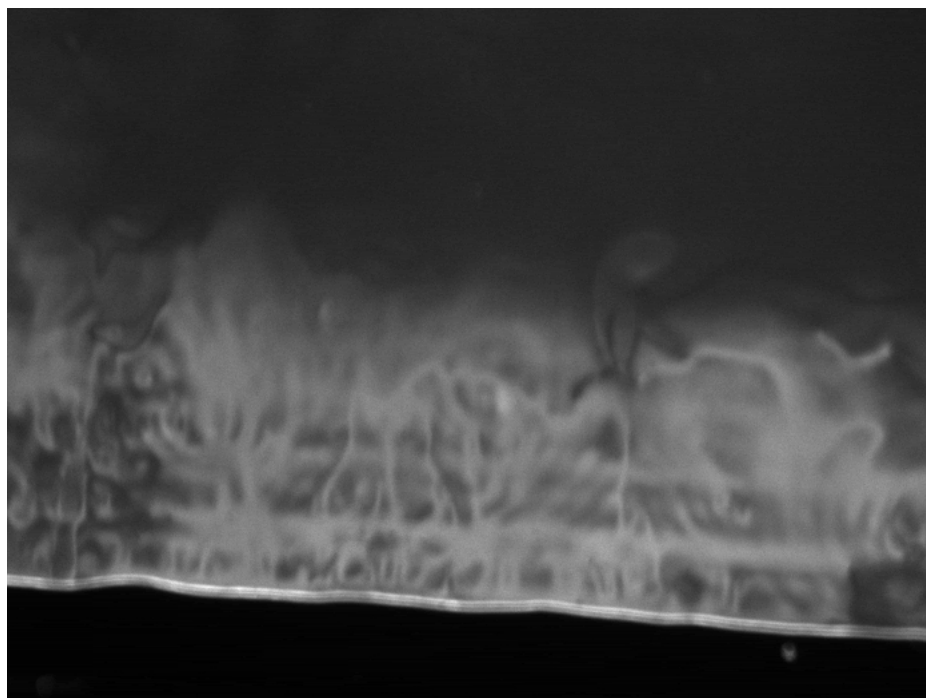


Abbildung 4.17: Die Oberflächenwelle erzeugt in einem Flüssigkristall, der sich in einem Spalt befindet, ein Stehwellenmuster und eine Strömung, die man im Bild als Schlieren erkennen kann. Das Bild wurde mit dem Aufbau für ein Auflichtmikroskop aufgenommen. Die Oberflächenwelle kam von unten. Man erkennt auch sehr gut die Kante, die sich dort befindet wo sich die Farbe des Bildes von schwarz sprunghaft auf grau ändert. Die Bilder stammen aus dem Film [streifen07dbm.mpg](#)

Um die Wirkung des elektrischen Feldes auf die Flüssigkristallmoleküle zu untersuchen, wurde der Aufbau vereinfacht. Statt eines Rayleighwellen-Substrats wurde ein Scherwellen-Substrat verwendet. Da eine Scherwelle durch eine Flüssigkeit auf der Substratoberfläche nicht gedämpft wird, ist es einfacher Stehende Wellen zu erzeugen. Dazu sendeten zwei gegenüberliegende Schallwandler gegeneinander laufende Scherwellen aus<sup>2</sup>, die sich zu einer Stehenden Welle überlagerten. Zur Beobachtung wurde ein Aufbau wie in Abb. 4.16

<sup>2</sup>Dazu wurden zwei Hochfrequenz-Generatoren benutzt. Die beiden Generatoren verwendeten eine gemeinsame Referenzquelle, wodurch eine feste Phasenbeziehung zwischen beiden Quellen erreicht werden konnte.

rechtes Bild verwendet.

Überprüfte man die mechanische Wirkung der Scherwelle auf den Flüssigkristall, erhielt man das gleiche Ergebnis wie oben. Da die elektrischen Felder von Scherwellen und Rayleighwellen gleich sind, kann man Scherwellen als Vergleichssysteme heranziehen. Mit nur einer Scherwelle, konnte man die Ausbildung einer Druckwelle beobachten und auch den Verlauf des Schallpfades (s. Abb. 4.18).

Mit der Erzeugung der zweiten, gegenläufigen Scherwelle, konnte man sehr schön die Ausbildung eines Stehwellenmusters beobachten. Die Scherwellen hatten dabei die Frequenz 75,5 MHz und die Leistung 23 dBm. Der verwendete Schallwandler war symmetrisch und hatte die Apertur 600 µm. Daneben konnte man auch die Breite des Schallpfades und dessen Verlauf erkennen. Brachte man einen Polarisator in den Strahlengang und drehte diesen, konnte man den Kontrast des Stehwellenmusters auslöschen. Das vom Farbstoff emittierte Licht wurde vom Flüssigkristall polarisiert. Um die Beobachtung weiter zu vereinfachen, wurde die Frequenz einer der beiden Scherwellen um bis zu 10 Hz verstimmt. Überlagert man zwei Wellen

$$u_1 = A \sin(\omega_1 t - k_1 x) \quad \text{mit} \quad \omega_1 = 2\pi f \quad (4.7)$$

$$u_2 = A \sin(\omega_2 t - k_2 x) \quad \text{mit} \quad \omega_2 = 2\pi(f + \Delta f) \quad (4.8)$$

erhält man durch Superposition

$$u = u_1 + u_2 = 2A \underbrace{\sin\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}t - \frac{\omega_1 + \omega_2}{2c}x\right)}_{\text{Einhüllende}} \cos\left(\frac{\omega_1 + \omega_2}{2}t - \frac{\omega_1 - \omega_2}{2c}x\right) \quad . \quad (4.9)$$

Ist der Frequenzunterschied  $\Delta f$  nicht zu groß, erhält man eine fast Stehende Welle. Die Einhüllende dieser Welle hat die Frequenz und die Wellenzahl

$$\omega' = \frac{\omega_1 - \omega_2}{2} \quad (4.10)$$

$$\text{und} \quad k' = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2c} \quad . \quad (4.11)$$

Die Einhüllende wandert mit der Geschwindigkeit

$$c' = \frac{\omega'}{k'} = \frac{\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}}{\frac{\omega_1 + \omega_2}{2c}} = -\frac{\Delta f}{2f + \Delta f} \cdot c \quad . \quad (4.12)$$

Verstimmt man bei  $f = 75,5$  MHz eine der beiden Quellen um 2 Hz, so wandern die Knotenlinien der Stehwelle in 1 Sekunde um genau einen Knotenabstand weiter. Bei Verstimmung von einer der beiden Quellen sah man die Knotenlinien wandern. Durch die Bewegung waren sie deutlich vom Hintergrundbild zu unterscheiden und konnten leicht

beobachtet werden. Mit dem Polfilter konnte der Kontrast wiederum ausgelöscht werden. Die Geschwindigkeit der Knotenlinien entsprach auch der Erwartung.

Da die Flüssigkristalle ein permanentes Dipolmoment besitzen, richten sich diese nach dem elektrischen Feld der Oberflächenwellen aus. Eine Rechnung weist nach, dass das Molekül mit seinem permanenten Dipolmoment dem zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes der Welle durchaus folgen kann. Durch das elektrische Feld wirkt auf den Dipol ein Drehmoment, das ihn drehen will.

$$D = \dot{L} = I\ddot{\varphi} \Rightarrow pE \sin \varphi = I\ddot{\varphi} \quad (4.13)$$

Zur Abschätzung einer Grenzfrequenz reicht es aus Gl. (4.13) mit der Kleinwinkelnäherung  $\sin \varphi \approx \varphi$  zu betrachten. Man erhält

$$\omega^2 = \frac{pE}{I} \quad (4.14)$$

Betrachtet man den Flüssigkristall als rotierende dünne Stange, besitzt er das Trägheitsmoment  $I = \frac{1}{12}ml^2$ . Das Dipolmoment eines Moleküls stammt von der CN-Gruppe und beträgt  $1,41 \cdot 10^{-29}$  Cm. Die Länge des Moleküls beträgt etwa 1,5 nm. Bei der Versuchsdurchführung lagen 23 dBm am symmetrischen Schallwandler an. Das bedeutet in den 600  $\mu\text{m}$  breiten Schallpfad wurde die Leistung 20 dBm=100 mW abgestrahlt. Nach Gl. (4.1) und Gl. (4.2) hatte das laterale elektrische Feld die Amplitude  $E_1 = 9,8 \cdot 10^5 \frac{\text{V}}{\text{m}}$ . Setzt man nun Gl. (4.14) ein, erhält man als Grenzfrequenz  $f = 2,1$  GHz. Die Flüssigkristallmoleküle können durchaus dem elektrischen Wechselfeld der Welle folgen.

Die Versuche zeigten, dass eine Oberflächenwelle die Moleküle eines Flüssigkristalls ausrichten kann. Die Polarisierung des emittierten Licht zeigte dies. Mit diesem einfachen Mittel konnte auch der Verlauf des Schallpfads verdeutlicht werden. Dazu zeigte sich auch eine Struktur der Intensitätsverteilung im Schallpfad. Man Rand des Schallpfads war die Intensitätsüberhöhung, die durch die Endlichkeit der Apertur begründet ist, zu erkennen (vergleiche dazu Gl. (2.36))



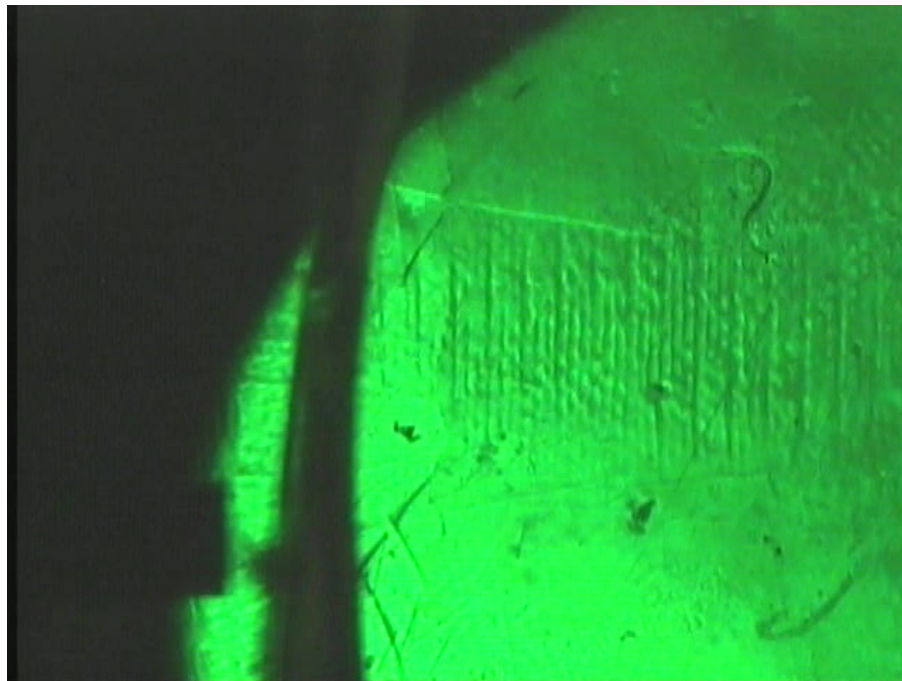
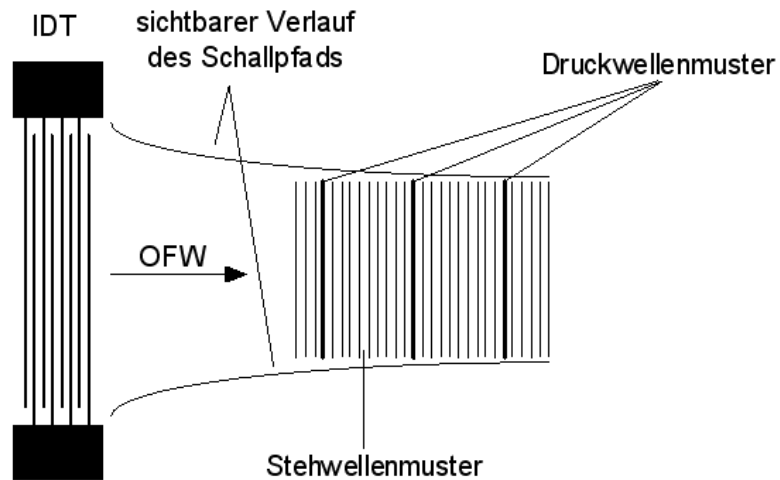


Abbildung 4.18: Die Intensität einer Oberflächenwelle zeigt am Rand eine Überhöhung der Intensität. Dies ist ein Beugungseffekt, der von der endlichen Apertur der Schallwandler verursacht wird. Im Experiment war dies durch zwei deutliche Linien zu erkennen. Das Bild ist aus dem Film [LCD11.mpg](#)



# Kapitel 5

## Volumenmoden

Zur Untersuchung des Vorgangs des Ausrichtens von Carbonnanotubes wurden Substrate verwendet, deren Kristallschnitt bei Erregung einer Welle mit einem Schallwandler eine Scherwelle erzeugt. Scherwellenbauteile finden ihre Anwendung hauptsächlich im Bereich der Sensorik [Kondoh94, Nomura95]. Sie wechselwirken zum einen mechanisch mit ihrer Umgebung. Dies trifft dann zu, wenn sie Massenbeläge auf der Oberfläche oder Änderungen der Viskoelastizität detektieren. Zum Anderen können Scherwellen auch durch elektrische Wechselwirkung Veränderungen wahrnehmen, wenn sich die Scherwelle auf einem Piezoelektrischen Substrat ausbreitet. Da sich bei der Verwendung der Scherwellenbauteile Effekte zeigten, die noch nicht beschrieben wurden, wurde die Verwendbarkeit der Scherwellen im Bereich der Fluidik untersucht. Im folgenden wird dargelegt, welche Versuche und Untersuchungen dazu durchgeführt wurden. Zur Verfügung stand dabei ein rot 36°-Y cut X Prop. LiTaO<sub>3</sub> Substrat (siehe dazu Tabellen 2.2 und 2.3).

### 5.1 Bestimmung der HF-Eigenschaften für Scherwellenbauteile

Vor der Verwendung eines Hochfrequenzbauteils (HF-Bauteil) müssen dessen Eigenschaften bekannt sein. Wie für alle Bauteile gilt dies auch für Scherwellenbauteile. Anhand einiger Beispielmessungen werden in diesem Abschnitt einige Eigenschaften der Scherwellenbauteile dargelegt, die auch für akustisch getriebene Fluidiksysteme Verwendung finden. Zur Messung des Transmissionssignals eines Scherwellenbauteils wurde ein Netzwerkanalysator verwendet. Als Scherwellensubstrat fand rot 36°-Y cut X Prop. LiTaO<sub>3</sub> Verwendung. Die Messung ergab die Resonanzfrequenz und Transmissionseigenschaften des Bauteils (s. Abb. 5.1). Verwendet wurde ein 4-Split Schallwandler (s. Abb. 2.4 auf S. 12), der 4 verschiedene Frequenzen anregen kann. Bedingt durch die Geometrie des Wandlers werden die Grundfrequenz, die 3., 5. und 7. Harmonische als Welle angeregt. Um Signalanteile zu unterdrücken, die nicht von der Scherwelle stammen, wurde zur Messung des Transmissionssignals ein Zeitfenster gesetzt. Da die Geschwindigkeit der Scherwelle bekannt ist, kann man sich bei bekanntem Abstand der Schallwandler die ungefähre Dauer der Schallausbrei-

tung über das Substrat ausrechnen. Um diesen Zeitpunkt herum setzt man ein Zeitfenster der Messung und filtert alle Signale heraus, die zur falschen Zeit am Empfangsschallwandler ankommen und so zum Rauschen beitragen. Bei einem Netzwerkanalysator erfüllt dies die Funktion „Gate“.

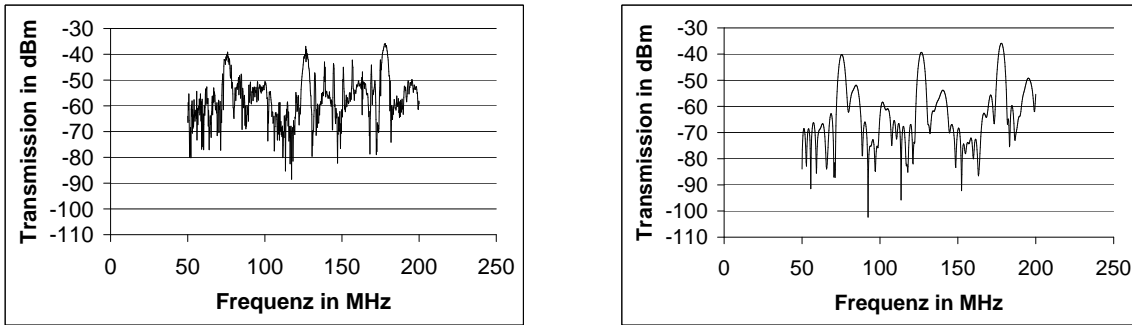


Abbildung 5.1: Mit einem Netzwerkanalysator wurde die Transmission  $S_{12}$  eines unbeschichteten Scherwellenbauteils aufgenommen. Der verwendete Schallwandler hatte eine 4-split Geometrie. Die Grundfrequenz des Schallwandlers lag bei 25,3 MHz und ist in beiden Aufnahmen nicht zu sehen. Die linke Kurve wurde ohne Zeitfenster aufgenommen. Sie zeigt die Resonanzen der drei höheren Resonanzfrequenzen und ein deutliches Rauschen. Im rechten Bild wurde ein Zeitfenster (420 ns bis 809 ns) gesetzt. Das Rauschen ist nahezu vollständig unterdrückt und man erkennt klar die Resonanzen des Bauteils, sowie drei weitere Nebenresonanzen bei etwas höherer Frequenz, die auf Volumenmoden zurückzuführen sind.

Hauptresonanz in MHz	75,5	126,5	177,9
Nebenresonanz in MHz	86,7	140,4	195,2

Tabelle 5.1: Lage der Resonanzen aus dem rechten Bild der Abb. 5.1

Wie man im rechten Bild der Abb. 5.1 sehen kann, beobachtet man neben den erwarteten und deutlich ausgeprägten Resonanzen Nebenresonanzen, die von Volumenmoden herrühren und weniger stark ausgeprägt sind. Diese entstehen direkt am Schallwandler und tauchen in das Volumen des Substrats hinein ab und werden an der Rückseite des Substrats reflektiert (s. Abb. 5.3). Propagiert eine Volumenwelle unter einem geeigneten Winkel, so erreicht sie den Empfangsschallwandler und man kann die Transmission der Nebenresonanz messen. Da die Volumenmode unter einem Winkel abgestrahlt wird, hat sie eine etwas verringerte Wellenlänge. Bei Verwendung der Näherung isotroper Schallgeschwindigkeit und der Annahme, dass die Schallgeschwindigkeit nicht von der Mode abhängt, äußert sich dies eine erhöhte Frequenz.

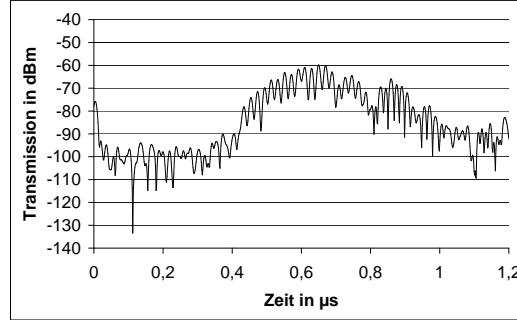


Abbildung 5.2: Darstellung der Zeitantwort des Transmissionssignals des Scherwellenbauteils, das auch für Abb 5.1 verwendet wurde.

Für die Wellenlänge  $\lambda'$  der Volumenmode gilt

$$\lambda' = \lambda \cos \alpha \quad (5.1)$$

mit der Wellenlänge  $\lambda$  der Scherwelle und dem Abtauchwinkel  $\alpha$  der Volumenwelle, gemessen vom Substrat aus. Unter der Annahme, dass die Schallgeschwindigkeiten der Volumenmode und der Scherwelle gleich sind, kann man die Resonanzfrequenz  $f'$  der Volumenmode näherungsweise zu

$$f' = \frac{f}{\cos \alpha} \quad (5.2)$$

bestimmen. Da das Signal der Volumenmode einen längeren Weg als die Scherwelle zurücklegt, kommt es gegenüber der Scherwelle zeitverzögert an. Die Scherwelle durchquert den Schallpfad mit Länge  $l$  in der Zeit

$$t = \frac{l}{v} \quad (5.3)$$

während die Volumenmode die Zeit

$$t' = \frac{\sqrt{l^2 + 4d^2}}{v} = t \sqrt{1 + \left(\frac{2d}{l}\right)^2} \quad (5.4)$$

benötigt. Die Reflektion am Grund des Substrats kann durch die Rauigkeit beeinflusst werden. Substrate mit polierter Rückseite zeigen deutliche Reflektionen der Volumenwelle, wohingegen raue Rückseiten geringe oder keine zeigen. Die Reflektionen kann man sehr gut mit einem Netzwerkanalysator beobachten. Das Zeitsignal des Reflektionskoeffizienten zeigt periodische Spitzen. Die Scherwelle selbst taucht entlang ihrer Ausbreitung über die Substratoberfläche in das Volumen hinein ab. Dies kann durch eine Führungsschicht unterbunden werden. Dazu beschichtet man ein Scherwellensubstrat mit einem Material,

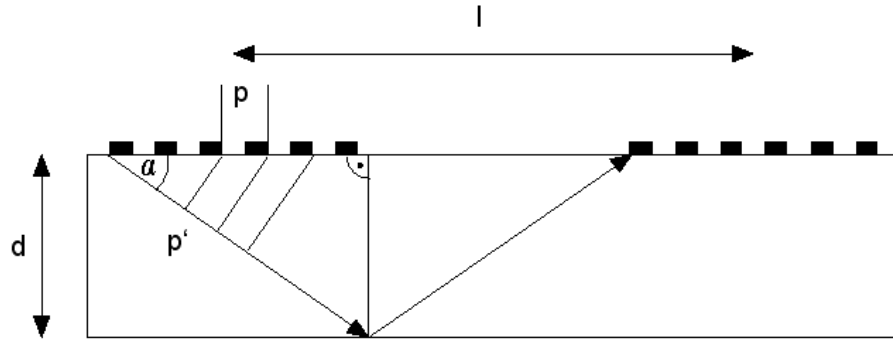


Abbildung 5.3: Vom Schallwandler wird neben der Scherwelle auch eine Volumenmode angeregt, die durch das Substrat läuft, auf der Rückseite reflektiert wird und am gegenüberliegenden Schallwandler ankommt. Die Periodizität  $p$  der Schallwandler wird auf die Ausbreitungsrichtung der Volumenmode projiziert, womit man die Periodizität  $p'$  der Volumenmode erhält und deren Wellenlänge bestimmen kann.

das eine kleinere Schallgeschwindigkeit als das Substrat besitzt. Die Beschichtung sorgt dafür, dass die Scherwelle an der Oberfläche [Jacoby00] geführt wird.

Eine Beschichtung der Proben mit 200 nm  $\text{SiO}_2$  in einer PECVD-Anlage erhöhte die Transmission der Leistung<sup>1</sup> der Proben bereits um den Faktor 4 (s. Abb. 5.4). Mit einer 200 nm dicken  $\text{SiO}_2$ -Schicht war bereits eine ausreichend große Transmission vorhanden, weshalb der Aufbau an diesem Punkt nicht weiter optimiert wurde. Eine 200 nm dicke Beschichtung wurde daher als Standard gewählt.

Setzte man einen Wassertropfen auf die Probenoberfläche, so vergrößerte sich die Höhe der Transmission der Scherwelle. Dagegen blieb die Transmission der Volumenmode unbeeinflusst. Da die Scherwelle an der Oberfläche der Probe läuft bzw. geführt wird, wechselwirkt sie mit dem flüssigkeitsgefüllten Volumen im oberen Halbraum, während die im Volumen laufende Mode davon unbeeinflusst bleibt. Man hat dadurch eine einfache Unterscheidungsmöglichkeit zwischen einer Scherwelle und einer Volumenmode.

## 5.2 Mischen mit Scherwellen

Wie im Abschnitt 2.5.1 auf S. 17 bereits beschrieben, breiten sich in Flüssigkeiten Scherwellen nicht aus. Daher finden Scherwellen bei Flüssigkeiten ihren Einsatz im Bereich der Sensorik. Da bisher davon ausgegangen wurde, dass Scherwellen mit Flüssigkeiten nicht mechanisch wechselwirken, fanden diese keinen Einsatz für Aktorikaufgaben. Im Gegensatz dazu steht das Ergebnis aus dem Vorversuch aus Abschnitt 4.2 auf S. 64.

Verwendet man in einem Mischaufbau (s. Abb. 5.5) statt eines Rayleighwellen-Substrat ein

<sup>1</sup>Ein Gegenversuch wurde mit  $\text{Si}_3\text{N}_4$  durchgeführt. Da die Schallgeschwindigkeit in  $\text{Si}_3\text{N}_4$  höher als in  $\text{LiTaO}_3$  ist, kann diese Beschichtung nicht als Führungsschicht verwendet werden. Die Transmission einer so präparierten Probe brach nahezu ganz zusammen.

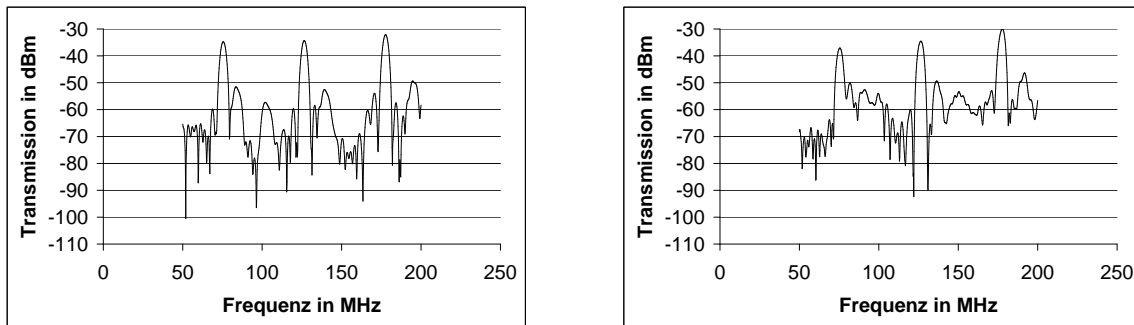


Abbildung 5.4: Die Transmission eines Scherwellenbauteils kann durch Massenbelag verändert werden. Im linken Bild wurde der Schallpfad des Scherwellenbauteils gänzlich mit Wasser bedeckt, im rechten Bild war das Bauteil mit 200 nm Quarz beschichtet. Bei der Messung wurde ein Zeitfenster gesetzt, das das Rauschen minimierte aber die Signalanteile der Scherwelle und Volumenmode berücksichtigte. Es wurde der gleiche Schallwandler, wie für Abb. 5.1 benutzt.

Scherwellen-Substrat, so erwartete man laut Literatur keine Beeinflussung der Flüssigkeit durch die Scherwelle. Bei der Versuchsdurchführung wurden auf ein Scherwellensubstrat ein Tropfen Wasser in den Schallpfad gegeben. In dem Tropfen wurden kleine Kügelchen suspendiert, die als Probekörper dienten.

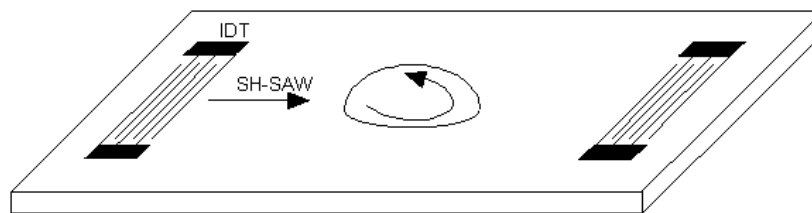


Abbildung 5.5: Versuchsaufbau zum Mischen eines Tropfen mit Scherwellen

Legte man an die Schallwandler eine HF-Spannung der Frequenz 225,5 MHz und einer Mindestleistung von 10 dBm an, konnte der Tropfen im Schallpfad mit der Scherwelle durchmischt werden. Das Strömungsbild glich dem aus den Experimenten mit Rayleighwellen. Auffallend war der deutlich höhere Leistungsbedarf um ein gleichwertiges Mischen zu erreichen. Wiederholte man dieses Experiment mit einem besser angepassten Schallwandler, so setzt der Mischvorgang bereits bei 2 dBm ein. Im Vergleich zur Nutzung von Rayleighwellen entspricht dies einem etwa um den Faktor 10 bis 20 höheren Leistungsbedarf [Ro00]. Ab 25 dBm Leistung veränderte der Tropfen wegen starker innerer Strömungen seine Form. Bei einer Leistung von 31 dBm bewegte sich manchmal auch der Tropfenrand in Richtung der Ausbreitung der Scherwelle. Dies war auch von einer Tröpfchenbildung um

den Tropfen herum begleitet.

Mit diesem Versuch wurde gezeigt, dass es durchaus möglich ist Mischaufbauten auf Scherwellenbasis zu realisieren. Eine Erklärung für das Auftreten des Mischphänomens liefern die Versuche zu den beiden Abschnitten des Kapitels 5.4 auf Seite 84.

Da Scherwellen anders als Rayleighwellen nicht durch Flüssigkeiten gedämpft werden, wurde als nächstes untersucht, ob sich mit Scherwellen auch mehrere Tropfen mischen lassen, die hintereinander im Schallpfad liegen. Zur Versuchsdurchführung wurde eine Probe verwendet, die nur einen Schallwandler besaß. Auf die Probe wurden zwei Tropfen pipettiert. In beide Tropfen wurden kleine Kugeln als Probekörper suspendiert. Mit Erzeugung der Scherwelle wurden beide Tropfen durchmischt. Beide Tropfen wurden mit der gleichen Effizienz durchmischt. Es zeigte sich an dieser Stelle ein Vorteil des Mischens mit Scherwellen gegenüber dem mit Rayleighwellen. Es kann mit nur einem Schallwandler mehr als ein Tropfen gemischt werden. Es gibt keinen Schatteneffekt, wie es ihn bei Verwendung von Rayleighmoden gibt (s. dazu Abb. 4.8 auf S. 61).

### 5.3 Elektrisches Feld der Oberflächenwelle in einer Flüssigkeit

Oberflächenwellen der Rayleighmode können mit Ladungsträgern, die sich in der Nähe der Oberfläche befinden, wechselwirken [Ingebrigtsen70]. Dabei bewirken die Ladungsträger eine Verringerung der Versteifung des Oberflächenwellen-Substrats. Da Scherwellen von einem elektrischen Feld mit gleichem Aussehen begleitet werden, wurde untersucht, ob Salzlösungen Einfluss auf die Ausbreitung einer Scherwelle über ein benetztes Substrat haben.

Der Versuch wurde wie in Abb. 5.5 aufgebaut. An die Probe wurde ein bekanntes, kontinuierliches HF-Signal mit der Leistung  $P = -8,2$  dBm und Frequenz  $f = 225,5$  MHz angeschlossen. Die Leistung wurde so gewählt, dass es keine signifikante Strömung gab. Ein zweiter Schallwandler auf der Probenoberfläche erlaubte eine Messung der transmittierten HF-Leistung mit einem Spektrumanalysator<sup>2</sup>. Bevor die Probe mit Reinstwasser benetzt wurde, maß man die Transmission der Scherwelle für ein trockenes Bauteil. Sie betrug  $-36,4$  dBm. Gab man 100 nl Wasser in den Schallpfad, erhöhte sich die Transmission auf  $-34,0$  dBm. Da das Substrat unbeschichtet war, benetzte der Tropfen den 2 mm langen Schallpfad auf einer Länge von etwa 1 mm. Dabei wurde darauf geachtet, dass der Tropfen den Schallwandler nirgends benetzte. Die Erhöhung der Transmission war auf das Wasser zurückzuführen, weil dieses eine geringere Schallgeschwindigkeit als  $\text{LiTaO}_3$  hat und somit die Scherwelle an der Oberfläche führte. Gab man nun Salzlösungen verschiedener Konzentration in den Schallpfad, so musste abermals darauf geachtet werden, dass die Lösung die Schallwandler nicht benetzte. War dies der Fall, so erlitten die Schallwandler bei Einschalten der HF-Spannung Beschädigungen durch Korrosion. Zu erkennen war dies durch Bläschenbildung an der Metallisierung der Schallwandler. Durch die Benetzung des Schall-

<sup>2</sup>Ein Spektrumanalysator zeichnet die Stärke eines HF-Signals gegen die Frequenz auf.

pfads mit Salzlösung verringerte sich die Transmission wieder unter  $-34$  dBm (s. Abb. 5.6). Gab man Salzlösung mit einer höheren Konzentration als  $0,01 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$  sank die Transmission unter den Wert des trockenen Bauteils. Bei  $0,1 \frac{\text{mol}}{\text{l}}$  erreichte die Transmission ein Minimum und stieg dann wieder an. Zwischen zwei Messpunkten wurde die Salzlösung wieder entfernt. Es musste dabei darauf geachtet werden, dass das trockene Substrat wieder seine ursprüngliche Transmission erreichte, um den folgenden Messpunkt nicht zu verfälschen. War dies nicht der Fall befanden sich noch Salzreste im Schallpfad. Diese waren durch eine Reinigung mit Reinstwasser leicht zu entfernen.

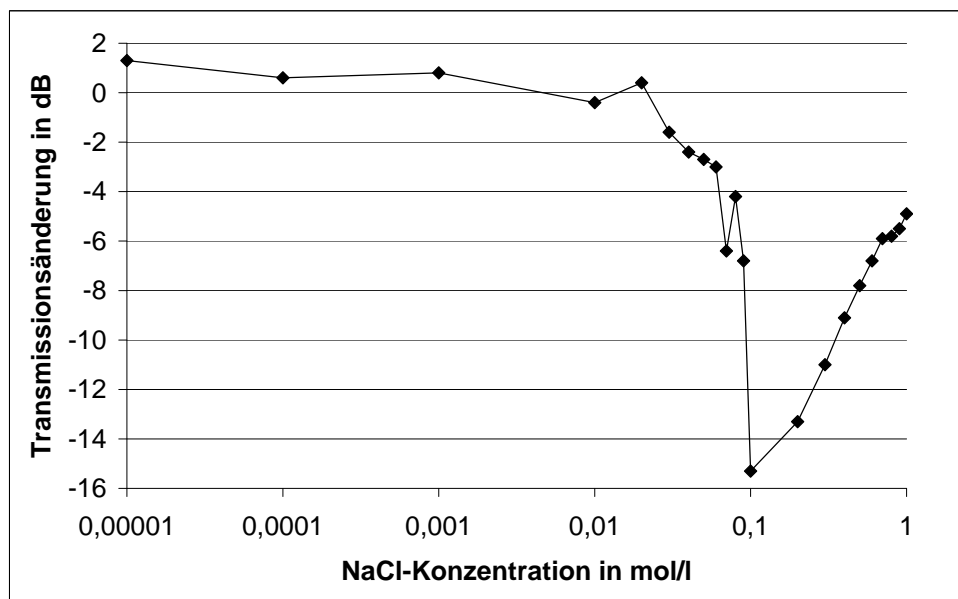


Abbildung 5.6: Benetzt eine Salzlösung die Oberfläche eines Scherwellensubstrats, ändern sich die Transmissionseigenschaften. Aufgetragen ist die Differenz der transmittierten Leistung gegenüber der trockenen Oberfläche gegen die NaCl-Konzentration. Bei einer bestimmten Konzentration erreicht die Dämpfung durch eine Salzlösung ein Maximum und nimmt dann wieder ab.

Die betrachteten experimentellen Ergebnisse wurden mit Hilfe des Relaxationsmodells ausgewertet [Hutson62]. Dabei wird davon ausgegangen, dass die Ionen der Salzlösung das elektrische Feld der Scherwelle beeinflussen und so eine Wirkung auf die Steifigkeit des Materials haben. Da das Relaxationsmodell zweidimensionale Ladungsträgerverteilung annimmt, muss an dieser Stelle zuerst eine Annahme darüber gemacht werden, welche Ladungsträger aus der Lösung mit der Oberfläche wechselwirken. Nach Gl. (4.4) fällt das elektrische Feld in  $x_3$ -Richtung exponentiell ins Volumen hinein ab. Das bedeutet die Welle

sieht nur Ladungsträger, die sich in einer Schicht der Dicke

$$d = k^{-1} \quad (5.5)$$

befinden (s. Gl. (4.4)). Um mit der zweidimensionalen Leitfähigkeit rechnen zu können, betrachtet man die dreidimensionale Ladungsträgerverteilung als zweidimensionale Projektion auf die Substratoberfläche und rechnet so die Leitfähigkeit  $\sigma$  in eine Flächenleitfähigkeit  $\sigma_A$  um. Es gilt

$$\sigma_A = \sigma \cdot d \quad (5.6)$$

Will man die Gleichungen (2.37) und (2.38) anwenden, muss die Transmissionsänderung  $\Delta P$  des mit Salzlösung benetzten Bauteils gegenüber eines mit Reinstwasser benetzten Bauteils umgerechnet werden. Es gilt

$$1 - 10^{\frac{\Delta P}{10}} = \Gamma \cdot L \quad (5.7)$$

mit dem Dämpfungskoeffizienten  $\Gamma$  und der Länge  $L$ , die für die Länge des benetzten Teils des Schallpfads steht. Werden die Gleichungen (5.5) und (5.6) auf Gleichung (2.37) angewandt und das Ergebnis auf beiden Seiten mit  $L$  multipliziert, erhält man

$$\Gamma L = L K_{eff}^2 k \sigma_{max} \frac{\sigma}{\sigma_{max}^2 + \left( \sigma + \sigma_{max} \frac{Dk}{v} \right)^2} \quad (5.8)$$

mit  $\sigma_m = \sigma_{max} \cdot d$ . Der Anteil der Dämpfung am Messergebnis darf als verschwindend betrachtet werden, weil  $Dk_{OFW} v^{-1} \approx 10^{-7}$  gilt. Um die Daten an eine Kurve der Form

$$y = \frac{w_0 x}{x^2 + w_1} \quad (5.9)$$

zu fitten, muss man die Salzkonzentration in Leitfähigkeit umrechnen. Da die Leitfähigkeit einer Salzlösung nach Abschnitt 2.6 nicht wie in Gl. (2.66) linear zusammenhängt, wurde die Konzentration mit den Gleichungen (2.68) bis (2.78) in die Leitfähigkeit umgerechnet. Wurden die Daten mit Gl. (5.9) gefittet, erhielt man als Fitwerte

Parameter	Fitwert
$w_0$	$(4,47 \pm 0,44) \text{ Sm}^{-1}$
$w_1$	$(3,31 \pm 0,56) \text{ S}^2\text{m}^{-2}$

Tabelle 5.2: Fitwerte zu Abb. 5.7

Der Fitparameter  $w_1$  gibt das direkte Ergebnis für  $\sigma_{max}^2$ . Rechnet man nach Gl. (5.6) um, erhält man eine kritische Flächenleitfähigkeit von  $\sigma_m = \sigma_{max} \cdot d = (5,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-6} \text{ S}$ . Der theoretische Wert ermittelt sich nach Gl. (2.39) zu  $\sigma_m = c\varepsilon_0(\varepsilon_{H_2O} + \varepsilon_{LiTaO_3}) = 4,8 \cdot 10^{-6} \text{ S}$ . Da der Theoriewert innerhalb des Fehlerbereichs des Messwerts liegt, kann davon ausgegangen werden, dass das modifizierte Relaxationsmodell die Ergebnisse richtig interpretiert



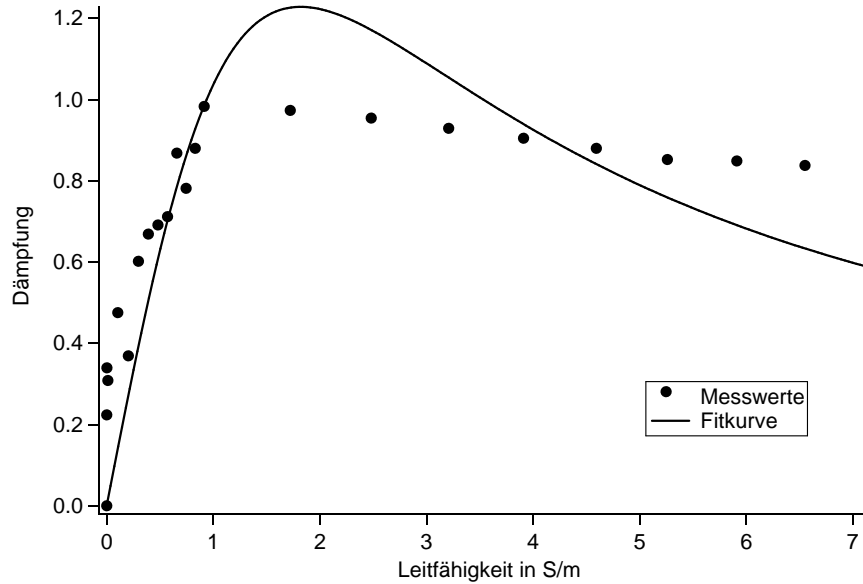


Abbildung 5.7: Fit eines Relaxationsmodells an die Transmissionsmessung eines mit Elektrolyt benetzten Scherwellenbauteils; für den Fit wurde das Programm Igor Pro 4.02A genutzt.

und auch die Annahme für den Verlauf des Elektrischen Feldes im oberen Halbraum (s. Gl. (4.4) richtig sind. Der Fitwert  $w_0 = LK_{eff}^2 k \sigma_{max}$  kann als Kontrolle verwendet werden. In diesem Fall wird die Länge  $L$  des benetzten Schallpfades berechnet. Mit den erhaltenen Werten ergibt sich  $L = (0,2 \pm 0,03)$  mm. Dieser Wert gibt die Verhältnisse des Experiments um einen Faktor 5 zu klein wieder aber in der richtigen Größenordnung. Auch kann man nicht davon ausgehen, dass beim Aufpipettieren des Tropfens immer eine gleich große Fläche benetzt wurde. Daher kann eine übereinstimmende Größenordnung als ausreichende Kontrolle erachtet werden. Unberücksichtigt blieb, dass eine benetzte Oberfläche geladen ist. Gerade auf oxidischen Oberflächen wie  $\text{LiTaO}_3$  dissoziieren die OH-Absättigungen der Oberflächenatome, wodurch die negativ geladenen Sauerstoffatome an der Oberfläche zurückbleiben und in einer dünnen Schicht sich  $\text{H}_3\text{O}^+$ -Ionen bilden. Deren Leitfähigkeit wurde bei der Auswertung nicht berücksichtigt.

In einer zweiten Messung konnte bei Verwendung des Netzwerkanalysators auch eine Laufzeitverzögerung der Scherwelle gemessen werden. Bei der Messung der Eigenschaften des Bauteils im Frequenzraum wurde der Messbereich auf  $\pm 1$  MHz um die Resonanz des Schallwandlers eingeschränkt. Bei Transformation dieses Signals in den Zeitraum erhielt man den Ankunftszeitpunkt der transmittierten Scherwelle. Das trockene Bauteil hatte bei 415,5 ns

ein Maximum des Transmissionssignals. Gab man 100 nl einer 5 molaren NaCl-Lösung in den Schallpfad, benetzte dieser ihn auf der Länge  $d=730\text{ }\mu\text{m}$ . Das benetzte Bauteil zeigte reproduzierbar ein Transmissionsmaximum bei 419,3 ns. Für das unbenetzte Bauteil ergibt sich eine Laufzeit von

$$t_1 = \frac{l}{v} \quad (5.10)$$

Für ein teilweise benetztes Bauteil ändert sich die Laufzeit und ergibt sich zu

$$t_2 = \frac{l-d}{v} + \frac{d}{v + \Delta v} \quad (5.11)$$

Fasst man die beiden letzten Gleichungen zusammen, erhält man eine relative Geschwindigkeitsänderung

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{(t_1 - t_2) \frac{v}{d}}{1 - (t_1 - t_2) \frac{v}{d}} \quad (5.12)$$

die nach Gl. (2.17) ein direktes Maß für  $K_{eff}^2$  ist. Man erhält mit den Messwerten  $K_{eff}^2 = 0,044$ . Dieser Wert passt sehr gut zum Literaturwert von 0,047.

Man kann mit Scherwellenbauteilen die Wirkung des elektrischen Feldes auf eine benetzte Oberfläche und dem darüber befindlichen Volumen untersuchen. Dabei kann das Relaxationsmodell benutzt werden. Führte man die Messreihe bei verschiedenen Frequenzen durch, so stellte man keine signifikante Abhängigkeit der kritischen Leitfähigkeit von der Frequenz fest. Da man weiß, wie weit das elektrische Feld in das Volumen effektiv reicht, bekommt man die Möglichkeit ein Volumen schichtweise abzutasten, in dem man die Frequenz der detektierenden Welle ändert. Dies ist besonders für Prozesse interessant, die an Oberflächen ablaufen und z.B. einen bestimmten pH-Wert benötigen. Da hier die Leitfähigkeit gemessen wurde, kann man mit dem gleichen Aufbau auch anderen Größen wie Salzkonzentration oder den pH-Wert einer Lösung messen.

## 5.4 Modenkonzersion

Bei Erzeugung einer Scherwelle wird nicht nur alleine die Scherwelle angeregt, sondern auch Volumenwellen, wie man in der Messung zu Abb. 5.1 auf S. 76 sehen kann. Die Volumenmoden breiten sich im gesamten Kristall aus. Daher treffen sie auch auf die Unterseite des Substrats. Es stellte sich die Frage, ob man diese Schwingungsmoden auskoppeln und zum Mischen einer Flüssigkeit auf der Chipunterseite nutzen kann.

### 5.4.1 Volumenmoden der Scherwellenbauteile

In Scherwellenbauteilen breiten sich neben der Scherwelle selbst auch noch Volumenmoden aus. Im folgenden wurde untersucht, ob sich diese Moden nutzen lassen, einen Tropfen zu mischen.

Zur Versuchsdurchführung musste die Unterseite eines Chips zugänglich sein. Da die Proben zur Integration in den Messaufbau auf einen Sockel (s. Abb. 3.10) geklebt werden mussten, wurde die Probe nicht zentriert aufgeklebt. Ein Teil der Probe ragte über den Sockel hinaus (s. Abb. 5.8), so dass die Unterseite teilweise frei zugänglich war. Als Probenmaterial wurde ein unbeschichtetes Scherwellensubstrat mit rauer Rückseite und zwei gegenüberliegenden Schallwandlern verwendet. Der Schallwandler regte eine Scherwelle mit der Frequenz 177,7 MHz resonant an. Die Leistung der angelegten HF-Spannung betrug zwischen -10 dBm und 20 dBm. Auf die Unterseite des Chips wurde mit einer Pipette ein Tropfen gesetzt. In den Tropfen wurden zur Verdeutlichung einer Strömung Kügelchen als Probekörper suspendiert.

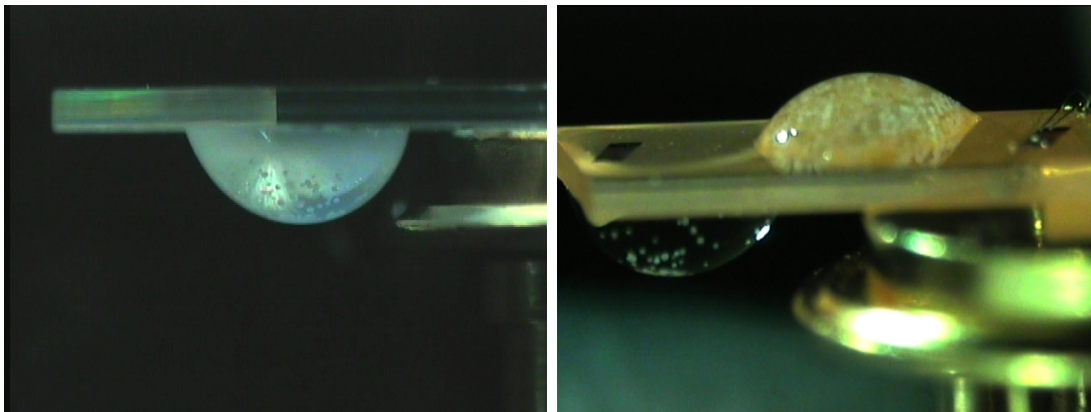


Abbildung 5.8: Im linken Bild ragt Teil des Substrat über den Sockel hinaus. Auf der Chipunterseite sitzt der Tropfen. Im rechten Bild der Aufbau seitlich von oben betrachtet. Unter dem linken Schallwandler sitzt ein Tropfen auf der Unterseite sowie in der Bildmitte ein zweiter Tropfen auf der Oberseite. In beiden Tropfen sind Kügelchen suspendiert. Am rechten Bildrand erkennt man den Schallwandler, der das System anregt. Zu den Bildern siehe auch den Film [Tropfen\\_rueckseite.mpg](#)

Ab einer Leistung der HF-Spannung von -8 dBm konnte man eine Strömung anhand einer Bewegung der Kügelchen wahrnehmen. Erhöhte man die Leistung strömten die Kügelchen schneller. Dabei zeigte sich ab 6 dBm ein Differenzierungsprozess. Die Kügelchen ordneten sich im Tropfen in bestimmten Bahnen an. Dabei wurde die Ordnung augenscheinlich von der Größe der Kügelchen bestimmt. Ab einer Leistung von 10 dBm lösten sich die Bahnen auf und der Tropfen durchmischte sich vollständig. Setzte man auf die Oberseite des Chips einen Tropfen, zeigte dies keine Auswirkungen auf den Mischvorgang des Tropfens auf der Unterseite. Die Mischeffizienz war in beiden Tropfen augenscheinlich gleich groß. Die Position des Tropfens auf der Oberseite zeigte ebenfalls keinen Einfluss auf den Mischvorgang unten.

Der Versuch zeigte, dass Volumenmoden, die in einem Scherwellenbauteil auftreten, ebenfalls zur Flüssigkeitsakustik genutzt werden können. Die Nutzbarkeit der Chipunterseite zum Mischen gibt die Möglichkeit zur Trennung der elektrischen Anschlüsse von der Fluidik. Die Schallwandler müssen nicht in unmittelbarer Nähe der Flüssigkeit sein. Es entfällt

in einem derartigem Aufbau die Notwendigkeit die Schallwandler und elektrische Zuleitungen vor Korrosion zu schützen. Dies ist besonders dann vorteilhaft, wenn mit aggressiven Flüssigkeiten umzugehen ist. Weil das Substrat den Ort des Mischens und der Wellenanregung voneinander räumlich trennt. Die Tatsache, dass die Mischeffizienz auf Ober- und Unterseite gleich waren, kann ein Hinweis darauf sein, dass der Mechanismus des Mischens mit Scherwellen (s. Abschnitt 5.2) mittelbar funktioniert. Eine Scherwelle wandelt sich in eine Volumenmoden um, die die Aktoik verursacht. Da sich die Volumenmode durch den gesamten Kristall ausbreitet, kann auf Ober- und Unterseite gemischt werden.

### 5.4.2 Volumenmoden in Rayleighwellensubstraten

Mit Volumenmoden auf Scherwellenbauteilen kann ein Tropfen auf der Chipunterseite gemischt werden. Es drängt sich in diesem Zusammenhang die Frage auf, ob man auch der Unterseite eines Rayleighwellensubstrats mischen kann.

Für die Versuchsdurchführung wurde eine Probe wie in Abb. 5.8 hergestellt. Der Oberflächenwellenchip ragte bei der Versuchsdurchführung über den Sockel hinaus. Die Unterseite des verwendeten Rayleighwellensubstrats war rau. Mit einer HF-Spannung der Frequenz 114 MHz und einer Leistung zwischen -10 dBm und 20 dBm wurde eine Oberflächenwelle erzeugt. Auf der Probenoberseite befanden sich zwei gegenüberliegende Schallwandler. Auf der Unterseite des Chips wurde ein Tropfen gesetzt, in dem Kügelchen als Probekörper suspendiert waren. Ab einer HF-Leistung von -8 dBm zeigte sich eine Bewegung der Kügelchen aufgrund einer Strömung. Erhöhte man die Leistung der angelegten HF-Spannung erhöhte sich auch die Strömungsgeschwindigkeit im Tropfen. Setzte man auf die Oberseite des Chips einen Tropfen verringerte sich die Strömungsgeschwindigkeit im unteren Tropfen augenblicklich und wurde erst dann wieder größer, wenn der obere Tropfen entfernt wurde. Der obere Tropfen dagegen war unbeeinflusst davon, ob ein Tropfen auf der Unterseite war oder nicht. Dies lässt darauf schließen, dass der Mischvorgang im unteren Tropfen im Zusammenhang mit der Ausbreitung der Rayleighwelle auf der Oberseite steht. Vergleicht man die Mischeffizienz beider Tropfen, zeigte sich eine deutlich größere Effizienz beim Tropfen auf der Oberseite.

Die Energie einer Oberflächenwelle der Rayleighmode ist durch die Randbedingungen im Wesentlichen auf die Oberfläche beschränkt. Es stellte sich daher die Frage, woher die Schallenergie kommt, mit der auf der Unterseite gemischt werden kann. Um die Beobachtungsmöglichkeiten zu verbessern wurde ein Chip freitragend (s. Abb. 5.9) in den Aufbau integriert. Der Chip wurde hierfür seitlich an ein Deckglas geklebt, damit Ober- und Unterseite frei zugänglich waren. Die Schallwandler wurden mit Kupferdrahtlitzen<sup>3</sup> und Bahnen aus Leitsilber kontaktiert. Beide Methoden der Kontaktierung erwiesen sich als ausreichend hochfrequenztauglich.

Auf beiden Seiten des aufgehängten Chips waren Deckgläser angeklebt, die dafür Sorge trugen, dass eine ausreichend große Wassermenge (etwa 10 µl) auf die Chipunterseite ge-

<sup>3</sup>Bei den Litzen wurde darauf geachtet, dass sie nicht zu lang waren, damit sie möglichst gute HF-Eigenschaften besitzen

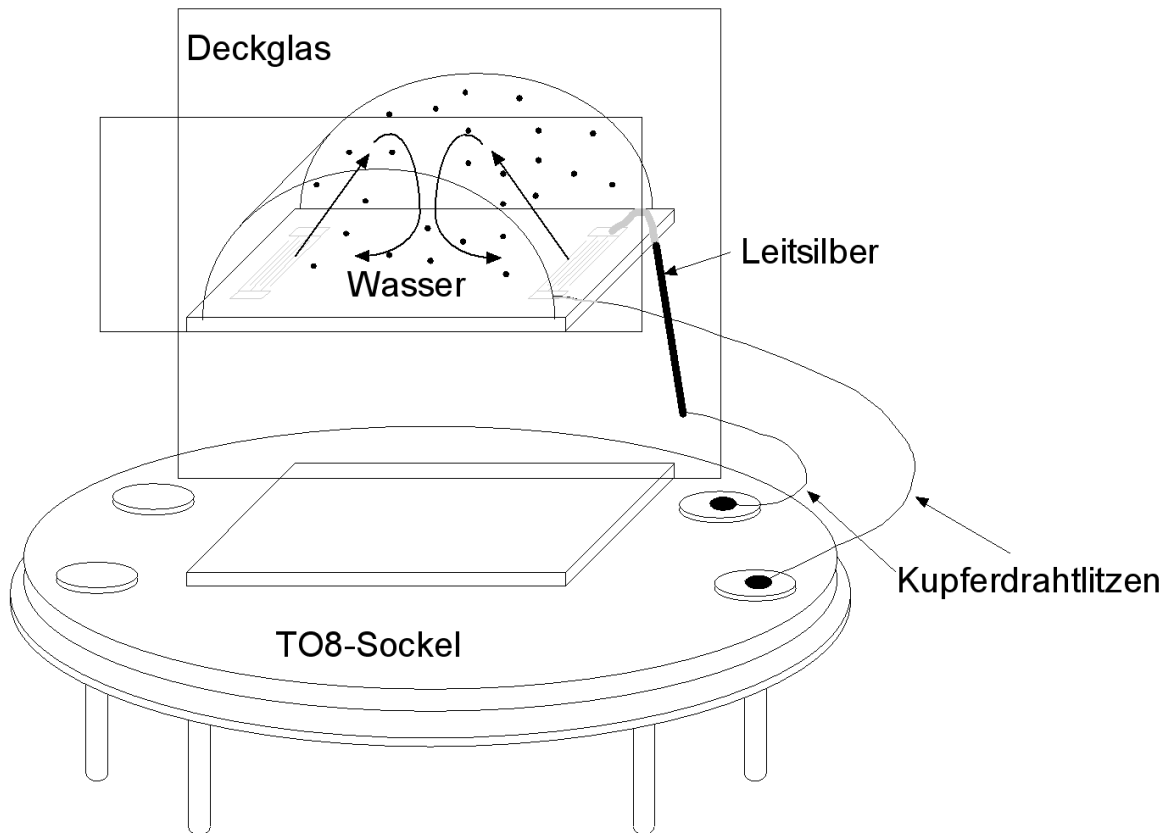


Abbildung 5.9: Zur Beobachtung des Mischvorgangs auf der Chipunterseite, wurde ein Chip freitragend an ein Deckglas geklebt. Die Schallwandler wurden mit Kupferdrahtlitzen und einer Bahn aus Leitsilber mit den Pins des Sockels verbunden. Zu diesem Bild siehe den Film [QuelleUnterseitenmischen1.mpg](#)

geben werden konnte und dass der Tropfen seitlich eine ebene Berandung hatte, damit die Beobachtung nicht durch den Linseneffekt einer gekrümmten Tropfenoberfläche erschwert wurde. In das Wasser wurden Kügelchen suspendiert, die als Probekörper die Strömung verdeutlichen sollten.

Erzeugte man eine Oberflächenwelle, setzte im Wasser augenblicklich eine Strömung ein. Es zeigte sich an Hand der Kügelchen sofort, dass der Ort für die Entstehung der Strömung direkt unterhalb der beiden Schallwandler lag. Die Kügelchen bewegten sich vom auf die Unterseite projizierten Ort des Schallwandlers mit hoher Geschwindigkeit weg. Besonders gut konnten die Kügelchen beobachtet werden, wenn man den Aufbau von unten durch das Substrat beobachtete und den Schattenwurf der Kügelchen verfolgte. Setzte man auf den Empfangsschallwandler oder in den Schallpfad einen Tropfen, hörte der Mischvorgang auf dieser Seite des Aufbaus sofort auf. Die suspendierten Kügelchen wurden vom Ort des Empfangsschallwandlers nicht mehr weggeströmt. Das Strömungsbild im Wasser änderte sich und wurde nur noch vom Sendeschallwandler bestimmt, der das gesamte Wasservolumen durchmischte. Die Kügelchen gingen aufgrund des neuen Strömungsbildes nun beim

Empfangsschallwandler nieder und strömten am Substratboden entlang zum Sendeschallwandler zurück. Mit der Entfernung des Tropfens setzte die Strömung am Empfangsschallwandler wieder ein.

Erklären lässt sich dies dadurch, dass die Schallwandler auf der Oberseite nicht nur Rayleighmoden anregen, sondern auch Volumenmoden, die das Wasser auf der Unterseite durchmischen. Begründet ist dies durch den Massenbelag, den der Schallwandler durch seine Eigenmasse verursachte [Wagner93]. Wobei in diesem Experiment dies für beide Schallwandler galt. Der Sendeschallwandler erzeugte neben der Oberflächenwelle zusätzlich eine Volumenmode, die auf ihrer Seite das Wasser mischte. Die Oberflächenwelle propagierte über die Oberseite zum Empfangsschallwandler. Dort regte sie den Schallwandler nach dem Sender-Empfänger-Prinzip zur Schwingung an, was dort wiederum eine Quelle für eine Volumenmode schuf, die ihrerseits ebenfalls das Wasser mischte. Der Übertragungsmechanismus konnte mit der Unterbrechung der Schallausbreitung über die Oberseite durch den Tropfen auf der Oberseite gestoppt werden. Mit der Entfernung des Tropfens konnte die Oberflächenwelle wieder Energie zum Empfangsschallwandler übertragen und der Mischvorgang setzte erneut ein.

Mit den beiden Versuchen zeigte sich, dass eine Trennung des Mischens von den elektrischen Zuleitungen möglich ist. Dafür kann auch ein Rayleighwellensubstrat verwendet werden, weil sich neben der Rayleighmode auch Volumenmoden im Kristall ausbreiten. Die Oberflächenwelle kann dabei durch Energieübertragung mehrere Quellen für einen Mischvorgang antreiben.

## 5.5 Hybride Mischaufbauten

Im Verlauf dieser Arbeit wurde bereits gezeigt, dass mit Volumenmoden Flüssigkeiten gemischt werden können. Neben Oberflächenwellenbauteilen finden auch Volumenschwinger Verwendung um mit Schallwellen Flüssigkeiten zu mischen. Auf einen solchen Volumenschwinger setzt man eine flüssigkeitsgefüllte Kammer. Zwischen Kammer und Schwinger befindet sich eine Flüssigkeit als Kopplungsmedium. Im folgenden wurde untersucht, ob man Oberflächenwellenchips auf die gleiche Weise verwenden kann.

Zur Versuchsdurchführung wurde auf die Unterseite des Chips statt eines Tropfens ein Stück eines Silizium-Einkristall befestigt (s. Abb. 5.10). Dazu wurde auf das Si-Stück ein kleiner Tropfen Wasser gegeben und das Si-Stück auf die Unterseite angedrückt. Kapillarkräfte ließen das Si-Stück am Chip haften. Auf die andere, freie zugängliche Seite des Silizium wurde ein Tropfen Wasser mit suspendierten Kügelchen gegeben.

Die Wasserschicht zwischen den beiden Festkörpern übernahm hier zwei Funktionen, zum einem sorgte sie für die Haftung des Siliziums am Chip zum anderen glich sie die akustischen Impedanzen an. Für die akustische Impedanz  $Z$  gilt

$$Z = v\rho \quad (5.13)$$

mit der Schallgeschwindigkeit  $v$  und der Dichte  $\rho$  des Ausbreitungsmedium. Da sich die beiden Substrate nicht aufeinanderlegen ließen ohne einen Luftspalt zu bilden, musste Was-



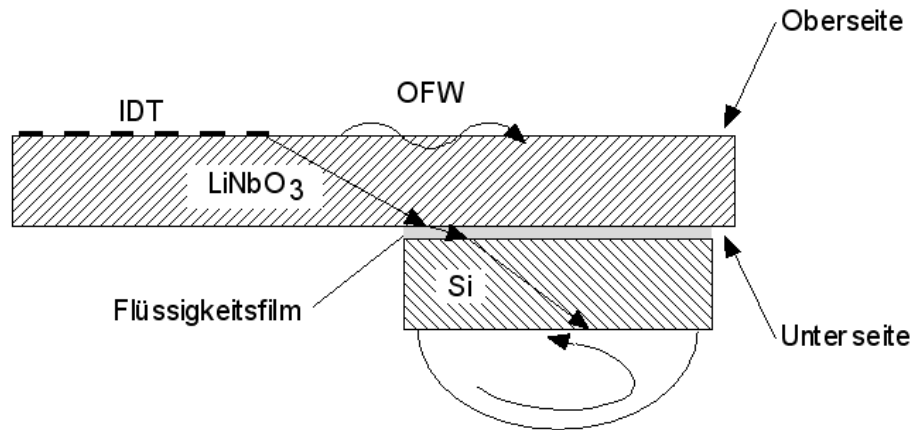


Abbildung 5.10: Hybrider Mischeraufbau auf Chipunterseite; siehe dazu den Film [SAW-durchSi-mischen\\_Rueckseite.mpg](#)

ser dazugegeben werden. Da Luft eine zu niedrige Impedanz hat, wird der Schall aus den Festkörpern nicht transmittiert und überträgt sich nicht zwischen den beiden Festkörpern. Dabei gilt für den Reflektionskoeffizienten zwischen zwei Medien

$$R = \frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2} \quad (5.14)$$

mit den beiden akustischen Impedanzen  $Z_1$  und  $Z_2$  der beiden Medien. Wasser dagegen besitzt eine zu den beiden Festkörpern vergleichbare akustische Impedanz, weshalb es eine Übertragung der Schallenergie zulässt.

Wurde am Schallwandler des Oberflächenwellensubstrats eine HF-Spannung der Leistung  $P=20$  dBm und der Frequenz  $f=114$  MHz angelegt, konnte man im Tropfen auf dem Silizium einen Mischvorgang beobachten. Die suspendierten Kügelchen zeigten eine deutliche Bewegung und der Tropfen wurde von der Strömung vollständig durchmischt. Die Volumenmoden des Oberflächenwellenchips konnten somit ausgekoppelt und in ein zweites Substrat übertragen werden, wodurch ein hybrider Aufbau geschaffen wurde.

Zum Vergleich wurde das Experiment wiederholt und das Silizium auf die Oberseite des Chips gelegt (s. Abb. 5.11). Wiederum wurden die beiden Festkörper durch eine Wasserschicht aneinander gekoppelt.

Wurde am Schallwandler eine HF-Spannung der Leistung  $P=20$  dBm und der Frequenz  $f=114$  MHz angelegt, konnte man im Tropfen wiederum einen Mischvorgang beobachten. Das Strömungsbild glich dem Bild eines mit Rayleighwellen gemischten Tropfens auf einem Oberflächenwellenchip. Die suspendierten Kügelchen zeigten eine Bewegung, die bedeutend schneller war als bei der Versuchsdurchführung auf der Unterseite. Bei der Versuchsdurchführung zum Hybridmischer zeigte sich, dass man eine optimale Menge Wasser zwischen die beiden Festkörper bringen musste, um eine effiziente Mischung im Tropfen zu erhalten. An Stelle des Wassers konnte man auch vakuumtaugliches Pumpenöl als Kopplungsmedium verwenden. Dabei war die Kopplung nicht so effektiv, aber deutlich vorhan-

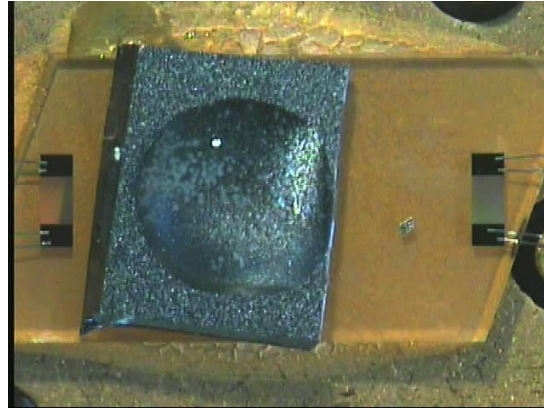


Abbildung 5.11: Auf einen Oberflächenwellchip wurde mit einem Wasserfilm ein Stückchen Silizium akustisch gekoppelt. Auf dem Silizium wurde ein Wassertropfen pipettiert, in dem Kügelchen suspendiert waren. Das Bild ist aus dem Film [SAWdurch-Si\\_mischen\\_Vorderseite.mpg](#)

den. Auf das Silizium konnte man auch zwei Tropfen setzen und beide wurden gemischt ohne, dass beide Tropfen voneinander beeinflusst worden wären, ein deutlicher Hinweis auf ein Mischen durch Volumenmoden. Die Lage der Kante des Kristalls im Schallpfad hatte keinen Einfluss auf den Mischvorgang.

Um den Einfluss des Spaltabstands zu untersuchen, wurde ein Aufbau wie in den Abb. 4.2 und 4.3 aufgebaut. Bei der Versuchsdurchführung wurde der Spaltabstand variiert. HF-Leistung, HF-Frequenz und Wassermengen blieben unverändert. In den Spalt wurde Wasser gegeben, so dass er bei einem Abstand von 50  $\mu\text{m}$  gefüllt war. Auf die Abdeckung wurde auf die Oberseite ein Wassertropfen pipettiert. In beiden Flüssigkeiten wurden Kügelchen suspendiert um die Strömung zu beobachten. Erzeugte man eine Oberflächenwelle, begann das Wasser im Spalt zu mischen. Der obere Tropfen zeigte bei einem Spaltabstand von 1 mm keine Veränderung. Verringerte man den Abstand auf etwa 200  $\mu\text{m}$  bis 100  $\mu\text{m}$ , setzte im oberen Tropfen ein Mischvorgang ein. Das Wasser im Spalt mischte weiter, wobei sich die Strömungsgeschwindigkeit verringerte. Mit immer kleiner werdenden Abstand erhöhte sich die Strömungsgeschwindigkeit im oberen Tropfen, während sich die im Film weiter verringerte. Dabei blieb die Strömungsgeschwindigkeit im Spalt stets größer als im Tropfen. Es zeigte sich mit diesem Versuch, dass bereits bei einem großen Spaltabstand die Kopplung erfolgt. Ein wellenmechanischer Effekt konnte somit ausgeschlossen werden.

Mit dem gleichen Aufbau wurde der Weg der Schallenergie untersucht. Der Versuchsaufbau wurde dazu im Vergleich zu vorher unverändert gelassen. Setzte man auf den Schallwandler oder in den Schallpfad einen Wassertropfen, so stoppte im Spalt und dem oberen Tropfen augenblicklich der Mischvorgang. Der Tropfen dämpfte die Oberflächenwelle vollständig und unterbrach den Übertragungsweg für die Schallenergie. In beiden Flüssigkeiten setzte die Strömung erst wieder ein, als der Tropfen vom Schallwandler oder aus dem Schallpfad entfernt wurde. Somit kann davon ausgegangen werden, dass die Oberflächenwelle selbst zur Übertragung der Schallenergie (s. Abb. 5.12) notwendig ist.



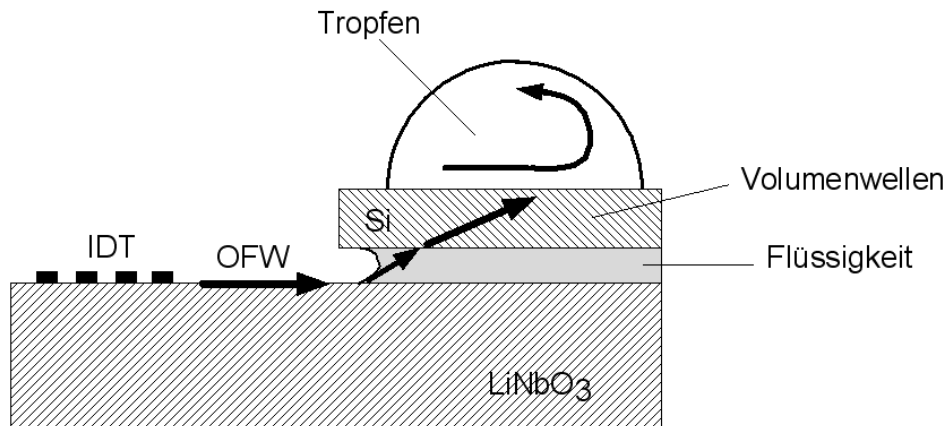


Abbildung 5.12: Die Oberflächenwelle propagiert über die Oberfläche des Oberflächenwellenchips und wird am Ort des Flüssigkeitsfilms in eine Volumenmode konvertiert, die durch die Flüssigkeit und das Silizium hindurch propagiert. Ein Tropfen auf dem Silizium kann mit dieser Volumenmode gemischt werden.

Die Oberflächenwelle wurde am Ort des Flüssigkeitsfilm in eine Volumenmode konvertiert. Diese Volumenmode durchquerte den Film und den Siliziumkristall um schließlich im Tropfen eine Strömung zu induzieren. Da ein Wassertropfen im Schallpfad die Mischung unterband, kann ein Weg der Schallenergie durch das Volumen des Substrat hindurch ausgeschlossen werden.

Mit dem gezeigten Aufbauprinzip hat man die Möglichkeit einen hybriden Mischer oder Oberflächenwellenantrieb zu gestalten. Interessant an dieser Stelle war die Kombination der Oberflächenwellentechnik mit Silizium. Weil Silizium verschwindende piezoelektrische Konstanten besitzt, kann auf diesem Material über den Anti-Piezoeffekt keine Oberflächenwelle erzeugt werden. So bietet sich hier die Möglichkeit das Standardmaterial der Halbleiterindustrie effizient mit der Oberflächenwellentechnik zu kombinieren. Im weiteren kann ein Oberflächenwellenantrieb wunschgemäß für ein zweites System entworfen werden, so dass eine gemeinsame abgestimmte Entwicklung entfallen kann und die eigentliche Abstimmung erst bei Herstellung von einem der beiden Systeme vorgenommen werden muss. Weiter zeigt sich die Möglichkeit die Trennung von Schallerzeuger und Mischgefäß derart zu nutzen, dass der Schallerzeuger zu einem festen Aufbau wird und mit einer austauschbaren Mischkammer versehen wird.



# Kapitel 6

## Elektrophoretische Separation

Elektrisch induzierte Transportphänomene werden häufig zum Trennen oder Sortieren geladener Teilchen oder Moleküle verwendet. Dabei wird mit elektrischen Feldern eine Bewegung erzeugt, geladene Teilchen bewegen sich entlang der Feldlinien. Für das folgende Kapitel wurde untersucht, wie man diese Methode des Antriebs für akustisch getriebene Fluidik verwenden kann.

Mit elektrischen Feldern werden in der Bioanalytik Teilchen nach ihrer Ladung oder Polarisierbarkeit getrennt oder charakterisiert. Diese Eigenschaften werden dazu genutzt um Gemische zu trennen oder Bestandteile einer Probenlösung zu analysieren. Die Verwendung der Elektrophorese als Anwendung stellt eine der zentralen Methoden der Bioanalytik dar. Aus diesem Grunde wird in den folgenden Abschnitten die Verwirklichung einer Elektrophorese auf einem Chip durch Planartechnologie betrachtet. Zudem eröffnet sich durch diese Betrachtungen die Basis für eine Anwendung auf einen Chip mit akustisch getriebener Fluidik.

### 6.1 Anreicherung

Befinden sich geladene Teilchen gelöst in einer nichtleitenden Flüssigkeit, kann man diese durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes bewegen. Man spricht dann von Elektrophorese [Tiselius37]. Will man den Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes auf Teilchen im akustisch getriebenen Strom untersuchen, muss man erst abschätzen wie groß dessen Einfluss im Vergleich zum akustisch angetriebenen Fluss sein wird. Dies führt auf ein Effizienzproblem.

Die Separation einer Substanz aus einer Lösung mittels Anlegen einer elektrischen Spannung ist eine häufig verwendete Methode einen Analyten zu gewinnen. In einem mikrofluidischen System stellt sich die Frage wie ein solcher Separator effektiv verwirklicht werden kann, da die Trennstrecken durch die Ausmaße des Systems beschränkt sind. Um auf einem Oberflächenwellen getriebenen Fluidikchip eine Separation zu erreichen wurde ein Aufbau gewählt, der es erlaubt eine elektrophoretisch bewegliche Substanz beliebig oft durch eine Trenneinheit laufen zu lassen.

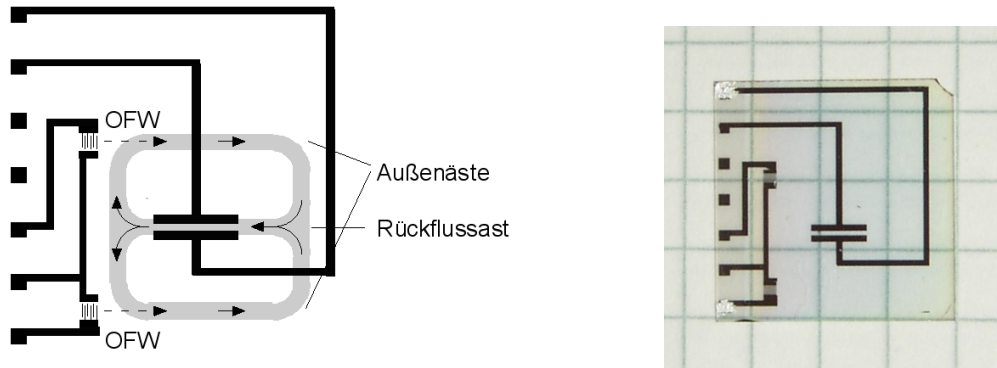


Abbildung 6.1: Links die Skizze eines Separationschips, schwarz die Metallisierungen des Chips, grau die planare durch lithographische Methoden definierte Fluidische Bahn (hydrophil) des Chips, die restliche Fläche des Chips war hydrophob. Bei diesem Chipdesign wurde nach der Metallisierung die gesamte Oberfläche mit Quarz passiviert. Man hatte damit eine einheitliche Oberfläche, die gänzlich mit OTS silanisiert werden konnte. Ohne die Quarzschicht hätte das OTS die metallisierten Stellen nicht silanisiert und ein zweiter Silanisierungsschritt wäre notwendig gewesen. Rechts das Bild eines Separationschips für das Experiment. Die Abmessungen des Chips betrugen 17,5 mm mal 17,5 mm.

In Abb. 6.1 ist ein Chipdesign abgebildet, wie es zur Anreicherung einer elektrophoretisch beweglichen Substanz verwendet wurde. Die Anreicherung geschah dabei in einem Teilbereich der Fluidischen Bahn. Die Fluidische Bahn besaß die Form einer Acht und stellte damit zwei Wasserkreisläufe dar, die einen gemeinsamen Rückflussast hatten. In jedem der beiden Kreisläufe wurde der Fluss durch eine Oberflächenwelle angetrieben. Dies geschah in den beiden jeweiligen Außenästen. Die Flüssigkeit strömte im oberen Kreislauf im Uhrzeigersinn im unteren entgegen. Am rechten T-Stück der Bahn trafen die beiden Ströme wieder aufeinander. Eine erneute Durchmischung der beiden Flüssigkeitsströme im Rückflussast fand nicht statt<sup>1</sup>, weil die Strömung im System einen streng laminaren Charakter hatte. Die Reynoldszahl [Reynolds83]

$$Re = \frac{v \rho b}{\eta}$$

mit der Strömungsgeschwindigkeit  $v$ , der Dichte  $\rho$  des strömenden Mediums, der charakteristischen Ausdehnung  $b$  und der Viskosität  $\eta$  des Mediums, war kleiner als 1. Die Bedingung für eine laminare Strömung ( $Re < 2000$ ) war damit erfüllt. Allgemein gilt, dass der laminare Charakter einer Strömung um so stärker ausgeprägt ist, je kleiner das System ist. Bei Fluidiksystemen auf Chips ist dies wegen der Kleinheit des Chips von vornherein gegeben. Die Laminarität der Strömung die bei Mischvorgängen ein massives Problem ist, war bei diesem Aufbau von äußerstem Nutzen. Am linken T-Stück trennten sich die beiden

<sup>1</sup>Das wohl beeindruckendste Beispiel für ein Nebeneinanderfließen zweier Strömungen im gleichen Becken ist wohl der Zusammenfluss von Amazonas und Rio Negro bei Manaus, Brasilien. Dort fließen die Wasser der beiden Flüsse bis zu 5 km nebeneinander her ohne zu vermischen.

Ströme wieder. Weil ein Fluidischer Chip mit Quarzbeschichtung bessere Oberflächeneigenschaften zeigt, als eine Lithiumniobatoberfläche, wurde der Chip standardmäßig beschichtet. Dies brachte einen zweiten Vorteil. Weil sich die Struktur der Fluidischen Bahn an einigen Stellen mit der Metallisierung kreuzte, hätte im Falle eines unbeschichteten Chips die Fluidische Struktur auf der Metallisierung der Elektroden und Zuleitungen durch einen zweiten Beschichtungsschritt ergänzt werden müssen. Da OTS auf Aluminium- oder Titanoberflächen nicht bindet, wäre eine zweite Beschichtung auf der Metallisierung von Nöten gewesen.

Im Rückflussast war eine planare Elektrodenstruktur integriert. Mit Hilfe dieser Struktur konnte senkrecht zum Fluidischen Fluss ein elektrisches Feld angelegt werden. Eine sich im Fluidischen Fluss elektrophoretisch bewegliche Substanz konnte damit eine zusätzliche Bewegungskomponente erhalten. Die Ablenkung erfolgte senkrecht zum Fluidischen Fluss. Eine anfangs über beide Kreisläufe gleichmäßig verteilte Substanz konnte so in einem der beiden Kreisläufe abgereichert werden und im anderen Kreislauf zugleich angereichert. Eine erneute Vermengung und damit verbundene Aufhebung der Entmischung trat wegen des laminaren Charakters der Strömung nicht auf. Falls die senkrechte Ablenkung zur Trennung nicht ausreichte, konnte die Ablenkung durch die Trenneinheit mehrmals erfolgen, da die Substanz die Trenneinheit beliebig oft durchströmen konnte. Ein Effizienzproblem wurde auf diese Weise ausgeschlossen. Eine nur teilweise erreichte Auftrennung wurde gewissermaßen „eingefroren“ und konnte bei einem weiteren Durchlauf verbessert werden.

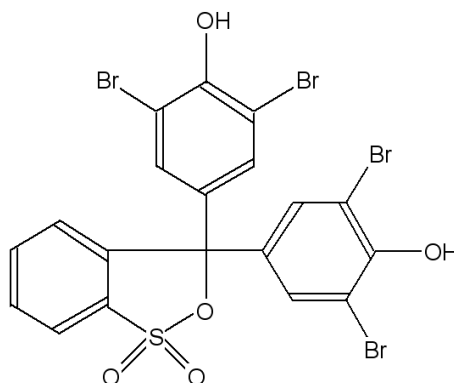


Abbildung 6.2: Strukturformel von Bromphenolblau; die molare Masse  $M$  des Bromphenolblau beträgt  $669,69 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$  und es hat eine Schüttdichte von  $730 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$  [Merck01].

Bei der experimentellen Durchführung wurde in die Fluidische Bahn Wasser mit Bromphenolblau (s. Abb. 6.2) gegeben. Bromphenolblau ist ein Salz, das Wasser intensiv blau färbt und trägt im gelösten Zustand eine Elementarladung pro Molekül. Im gelösten Zustand ist es elektrophoretisch beweglich. Erzeugte man mit den Schallwandlern eine Oberflächenwelle, setzte der akustisch getriebene Fluss ein und trieb die beiden Kreisläufe an. Lag an der Trenneinheit keine Spannung an, verteilte sich das Bromphenolblau gleichmäßig in beiden Kreisläufen. Bei Anlegen einer Spannung von 4 V an die Trenneinheit beobachtete man als erstes eine gering ausgeprägte Neigung zur Blasenbildung, die durch Elektrolyse

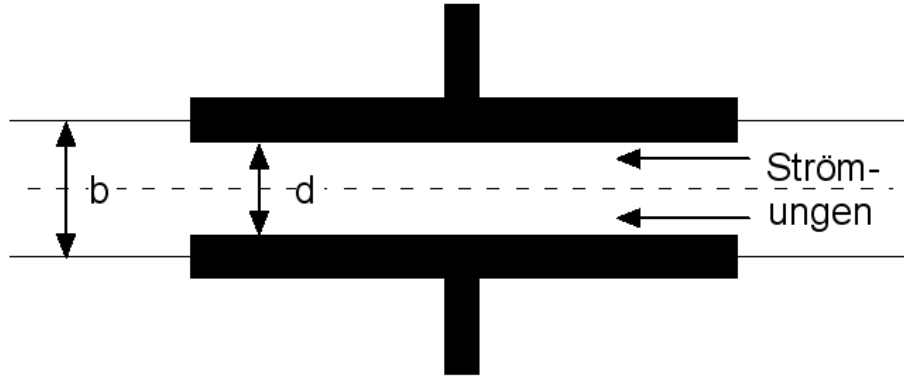


Abbildung 6.3: Geometrie der Trenneinheit des Separationschips aus Abb. 6.1, die Breite der Fluidischen Bahn betrug  $b=0,84$  mm und der Elektrodenabstand war  $d=0,40$  mm.

verursacht wurde. Die Quarzbeschichtung der Chipoberfläche verlangsamte dabei die Korrosion der Elektroden der Trenneinheit, verhinderte diese aber nicht – auf diesen Punkt wird im Abschnitt 7.3 auf S. 110 genauer eingegangen. Nach einigen Minuten erkannte man eine Anreicherung des Farbstoffs in dem Teilkreislauf, der der positiven Elektrode zugewandt war. Dies äußerte sich in einer unterschiedlich starken Blaufärbung der beiden Teilkreisläufe, die auch mit dem bloßen Auge erkannt werden konnte. Die Anreicherung des Farbstoffes war dabei von einer allgemeinen Entfärbung der Lösung überlagert. Diese Entfärbung konnte auf eine elektrolytische Zersetzung des Bromphenolblaus zurückgeführt werden. Dabei entstand auch ein blauer Niederschlag, der in den Fluidischen Bahnen ausfiel, das Experiment aber nicht weiter beeinflusste. Nach fast 7 Minuten war die Trennung ausreichend vollzogen. Polte man die Spannung um, konnte man die Verteilung des Farbstoffs in den beiden Teilkreisläufen austauschen.

Um zu überprüfen, ob es sich bei diesem Ergebnis tatsächlich um eine elektrophoretische Trennung handelte, wurde aus den experimentellen Daten der Molekülradius des Bromphenolblaus berechnet. Im ungünstigsten Fall musste ein Bromphenolblaumolekül den Weg  $\Delta x = 0,5b$  zurücklegen. Dazu benötigte das Molekül nur einen Bruchteil der Gesamtdauer des Experiments, weil es sich nicht während der gesamten Zeit in der Trenneinheit aufhielt. Der Anteil der Verweildauer  $t_s$  in der Trenneinheit wird aus der Zeitdauer  $t_u$  eines Umlaufs berechnet. Die Umlaufzeit setzt sich aus den einzelnen Beiträgen der Teilwege eines Umlaufs zusammen. Es gilt dabei

$$t_u = \frac{l}{2v} + 2 \cdot \frac{l}{2v} + \frac{l}{v} = \frac{5l}{2v} \quad (6.1)$$

mit der Länge  $l$  des Rückflussastes und der mittleren Strömungsgeschwindigkeit  $v$ . Da nicht der gesamte Mittelast der Acht von der Trenneinheit begrenzt war, sondern nur zu einem Drittel, wurde die Trenneinheit in der Zeit

$$t_s = \frac{l}{3 \cdot 2v} \quad (6.2)$$

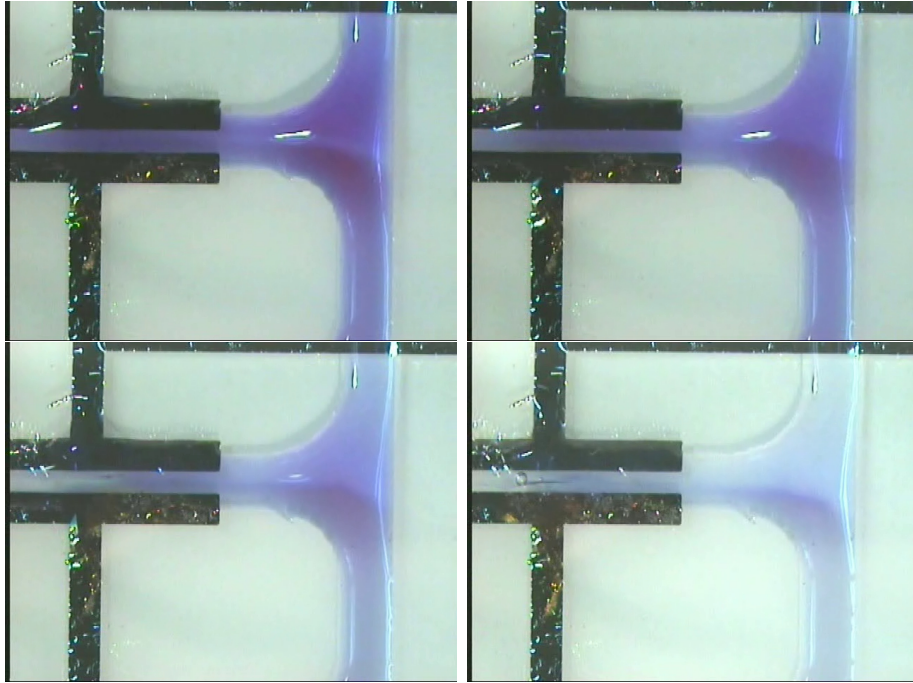


Abbildung 6.4: Bildsequenz eines Versuches mit dem Separationschip; das Bromphenolblau der Lösung reichert sich mit der Dauer des Experimentes im Kreislauf mit der positiven Elektrode - hier unten - an. Zu den Bildern siehe auch den Film [Anreich\\_Zeitraffer\\_divx.avi](#) im Zeitraffer, Faktor 10.

durchlaufen. Setzt man für den Bruch den Ausdruck für  $t_u$  ein, erhält man die Verweildauer in der Trenneinheit in Abhängigkeit von der Versuchsdauer, es gilt

$$t_s = \frac{1}{15}t_u \quad (6.3)$$

und gleichzeitig hat man damit eine Abschätzung für den Anteil der Zeit im Vergleich zur Gesamtversuchsdauer von 403 s, die ein Bromphenolblaumolekül in der Trenneinheit verbrachte. Ein Bromphenolblaumolekül hatte somit senkrecht zum Fluidischen Fluss die zusätzliche Geschwindigkeitskomponente

$$v_e = \frac{b}{2t_s} \quad (6.4)$$

die gleich der elektrophoretischen Geschwindigkeit war. Mit Gl. (2.86) berechnet sich der Molekülradius zu

$$R = \frac{eUt_s}{3\pi\eta bd} = 6,8 \text{ nm} \quad (6.5)$$

Mit der Berechnung des Volumen pro Molekül kann man den tatsächlichen Molekülra-

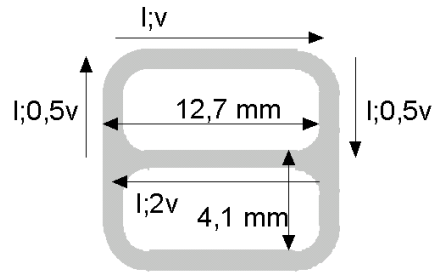


Abbildung 6.5: Darstellung der Teilwege in einem der beiden Teilkreisläufe und die dazugehörigen Geschwindigkeiten

dies angegeben. Dabei gilt

$$\frac{V}{N} = \frac{M_A}{N_A \varrho} \xrightarrow{N=1} R = \frac{1}{2} \sqrt[3]{\frac{M_A}{N_A \varrho}} = 0,6 \text{ nm} \quad (6.6)$$

hierbei stehen  $M_A$  für die Molare Masse,  $N_A$  für die Avogadrokonstante und  $\varrho$  für die Dichte. Die beiden Werte für den Molekülradius<sup>2</sup> unterscheiden sich um eine Größenordnung. Dieser Unterschied kann darauf zurückgeführt werden, dass zum einen nach Augenschein entschieden wurde, wann die Trennung vollständig war, zum anderen traten an den Eintrittsstellen der Oberflächenwelle in die Flüssigkeit Wirbel auf, die ein Molekül aus seiner Bahn warfen. Ein erreichter Fortschritt der Trennung konnte damit zum Teil wieder rückgängig gemacht werden. Da es gleich wahrscheinlich war, dass der Trennungsfortschritt verbessert oder verschlechtert wurde, ist es sinnvoll einen Faktor  $p = 0,5$  einzuführen, der diese Wahrscheinlichkeit berücksichtigt. Weiter vereinfacht die Annahme eines homogenen elektrischen Feldes das Problem zu sehr.

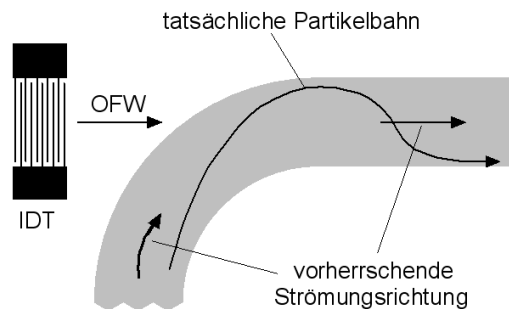


Abbildung 6.6: An Stelle des Eintritts der Oberflächenwelle, wird die Bahn eines Partikels von der vorherrschenden Strömung und vom Wirbel der eintretenden Oberflächenwelle bestimmt.

<sup>2</sup>Der abgeschätzte Radius des Bromphenolblaus ist sicher zu groß, da zur Abschätzung nur die Schüttdichte zur Verfügung stand. Aus der Strukturformel (Abb. 6.2) ergibt sich ein Molekülradius zwischen 0,52 nm und 0,4 nm. Zum Vergleich die Größe eines Benzolrings beträgt 278 pm.



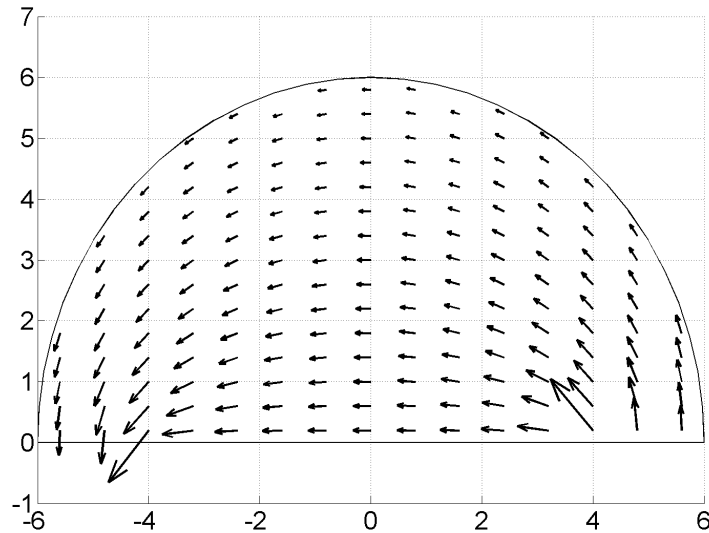


Abbildung 6.7: Simulation des elektrischen Feldes im Separator über eine Querschnittsfläche senkrecht zur Trenneinheit. Die Elektroden liegen entlang der Strecken  $[(-6/0), (-4/0)]$  und  $[(6/0), (4/0)]$ . Die Simulation wurde mit der Software FEMLAB 2.3 durchgeführt und zeigt das Vektorfeld.

Da die Form des Wasserkanals rund war, gab es kein homogenes elektrisches Feld (s. Abb. 6.7). Die Bromphenolblaumoleküle folgten in der Trenneinheit aber dem Verlauf der Feldlinien. Eine Simulation der Versuchsverhältnisse zeigte, dass ein Bromphenolblaumolekül, das am Punkt  $(-5,8/0,2)$  startete für den projizierten Weg  $\Delta x$  3,4 mehr Zeit benötigte als ein Molekül, das in einem fiktiven Aufbau mit geradliniger Berandung in einem homogenen Feld lief, aber den gleichen Startpunkt hatte. Dieser Faktor muss als Proportionalitätskonstante  $\tau$  mit der Funktion eines Geometriefaktors berücksichtigt werden. Unter Berücksichtigung dieser Konstante gibt obige Rechnung die Verhältnisse im Rahmen ihrer Möglichkeiten richtig wieder und es handelte sich bei diesem Versuch um eine elektrophoretische Trennung. Zur Berechnung des Molekülradius muss somit die Zeit  $t'_s = p\tau^{-1}t_s$  verwendet werden und es ergibt sich der Molekülradius  $R' = p\tau^{-1}R = 1$  nm, ein Wert der gut zum geschätzten Radius passt und die Größenordnung eines Moleküls richtig wiedergibt.

Um die Effizienzfrage zu klären, war auszurechnen, wie oft ein Bromphenolblaumolekül die Trenneinheit durchlaufen musste, damit es von einem Teilkreislauf in den anderen wechselt. Die Anzahl  $n$  der Schritte, die ein Molekül benötigt um den Weg  $\Delta x = 0,5b$  zurückzulegen ergibt sich aus

$$n = \frac{\Delta x}{x} = \frac{b}{2v_e t_s} \quad (6.7)$$

mit der Weglänge  $x$  eines Einzelschritts und der elektrophoretischen Geschwindigkeit

$v_e$ . Mit Gl. (2.86) folgt für die Anzahl der Schritte unter Verwendung des vereinfachten Modells

$$n \geq \frac{3\pi\eta bd}{Uqt_s} \cdot R \quad \text{und} \quad n \in \{1, 2, 3, \dots\} \quad (6.8)$$

Mit den Werten für das durchgeführte Experiment ergab sich, dass ein Bromphenolblau-moleküle 14 Schritte benötigte bevor es von einem Kreislauf in den anderen wechselte. Unter Berücksichtigung des Geometriefaktors  $\tau$  und der Wahrscheinlichkeit  $p$  erhält man als  $n' = p^{-1}\tau n = 83$  Schritte.

Bei diesem Versuch konnte gezeigt werden, dass ein akustisch getriebenes System mit kontinuierlichem Fluss aufgebaut werden kann. Die Verwendung externer elektrischer Felder, die Einfluss auf Inhalte des System nehmen ist möglich. Dazu wurden planare Elektroden definiert, die in-situ im Fluidischen Fluss arbeiteten. Bemerkenswert ist hier die Verwendung der Charakteristik des Systems. Der laminare Strömungscharakter ist bei diesem Versuch von äußerstem Nutzen, ganz im Gegensatz zu Mischaufbauten, wo man bemüht ist möglichst Turbulenz zu erzeugen, was bei kleinen Systemen nicht einfach ist. Zur Erweiterung der Funktion des Separators, kann statt der geradlinigen Berandung der Elektroden auch eine Elektrodenstruktur verwendet werden, die einen Feldgradienten erzeugt, so dass mit Anlegen einer elektrischen Wechselspannung eine Dielektrophoreseeinheit entsteht und eine Trennung aufgrund der Polarisierbarkeit möglich ist.

## 6.2 Elektrolyte im akustisch getriebenen Fluss

In Gegenwart elektrischer Felder können in Elektrolyten die geladenen Bestandteile bewegt werden. Von Oberflächenwellen auf piezoelektrischen Substraten ist bekannt, dass sie Elektronen mittels das sie begleitenden elektrischen Feldes bewegen können [Kutschera03]. Der Transport ganzer Moleküle durch die Oberflächenwelle wurde auch schon beobachtet [Terry81]. Bei Verwendung akustisch getriebener Fluidiksysteme stellt sich daher die Frage, wie die Bestandteile eines Elektrolyten auf das elektrische Feld reagieren, das die Oberflächenwelle begleitet.

Mit Gl. (2.83) kann man die Beweglichkeit eines Moleküls abschätzen, die es mindestens benötigt, um der Oberflächenwelle zu folgen. Die Ausbreitung der Oberflächenwelle auf einem piezoelektrischen Substrat wird von einem elektrischen Feld begleitet, dass sich wie die Welle selbst mit Schallgeschwindigkeit  $v = 3980 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  ausbreitet. Die typische Feldstärke einer Oberflächenwelle, die eine ausreichend große Amplitude besitzt um Flüssigkeiten zu mischen oder zu transportiert, liegt bei bis zu  $E = 10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ . Aus diesen beiden Werten ergibt sich eine Grenzgröße der elektrophoretischen Beweglichkeit

$$\mu_{limit} = \frac{v}{E} = 4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{m}^2}{\text{Vs}} \quad , \quad (6.9)$$

die ein Molekül besitzen muss, um dem elektrischen Feld der Welle mit Schallgeschwindigkeit folgen zu können. Ein Molekül mit dieser Beweglichkeit besitzt nach Gl. (2.86) den

## Molekülradius

$$R = \frac{q}{6\pi\eta\mu_{limit}} = 2 \cdot 10^{-15} \text{ m} < 5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m} = \frac{\varepsilon_0 h^2}{\pi m_e e^2} = a_0 \quad , \quad (6.10)$$

der kleiner als der Bohrradius  $a_0$  ist. Das bedeutet, dass ein Molekül kleiner als ein Atom sein muss, was ein Widerspruch ist. Dieser Widerspruch heißt, dass die Bestandteile eines Elektrolyten mit dem elektrischen Feld der Oberflächenwelle nicht derart wechselwirken können, dass sie durch das elektrische Feld der Oberflächenwelle transportiert werden. Diese Aussage wurde experimentell nachgeprüft. Da mit einer geringen Transporteffizienz zu rechnen war, wurde der Aufbau aus Abb. 6.1 verwendet und die Trenneinheit modifiziert.

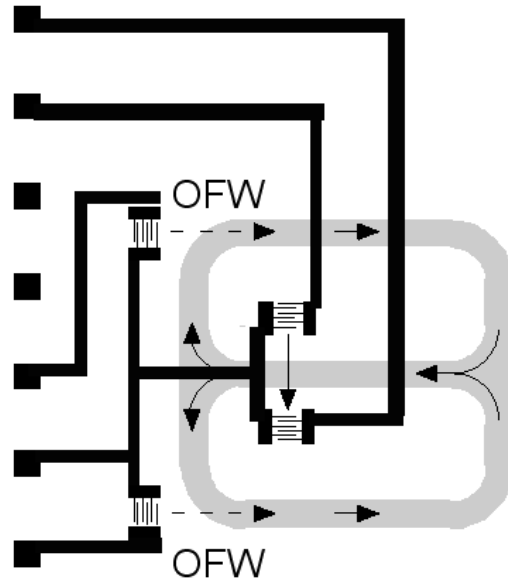


Abbildung 6.8: Skizze des Chips zum Test des Oberflächenwelle induzierten Molekültransports, schwarz die Metallisierungen des Chips, grau die planare durch lithographische Methoden definierte Fluidische Bahn. Im Vergleich zu Abb. 6.1 wurde die Trenneinheit durch eine Oberflächenwelle-Laufstrecke ersetzt.

In Abb. 6.8 ist der Chip abgebildet, der dazu genutzt wurde. Auf dem Chip wurde durch Oberflächenwellen ein Fluss induziert. Die Fluidischen Bahn bildete die Form einer Acht. In der Mitte der Acht, befand sich eine Oberflächenwellen-Laufstrecke, die als Trenneinheit diente (Details zum Aufbau s. Abschnitt 6.1). Erzeugte man einen Fluidischen Fluss und verwendete eine Bromphenolblaulösung, konnte man den gesamten Inhalt der Bahn gleichmäßig blau färben. Schaltete man die Oberflächenwelle der Trenneinheit ein, beobachtete man am Ort des Welleneintritts einen Wirbel. Nach über 1 Stunde Versuchsdauer zeigte sich keine Konzentrationsänderung in einem der beiden Kreisläufe.

Um die Transporteffizienz möglicherweise zu steigern, wurde der Versuch mit einem Scherwellensubstrat wiederholt. Da Scherwellen anders als Oberflächenwellen im Rayleighwellenmodus von Flüssigkeiten nicht gedämpft werden, bestand die Möglichkeit, dass diese einen

Transport besser induzieren können. Die Versuchsdurchführung zeigte aber auch hier ein negatives Ergebnis.

Zur weiteren Verbesserung eines möglicherweise vorhanden Transportphänomens, wurde in der Trenneinheit eine fast stehende Welle erzeugt. Da die Moleküle eine geringe Beweglichkeit besaßen, durfte die Geschwindigkeit der Stehenden Welle nicht zu hoch sein. Bei einer typischen Feldstärke der Oberflächenwelle von  $10^6 \text{ Vm}^{-1}$  und einer Beweglichkeit von  $7,2 \cdot 10^6 \text{ m}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ , darf die Geschwindigkeit der Knoten der fast Stehenden Welle nach Gl. (2.83) nicht größer als  $7,2 \text{ ms}^{-1}$  sein. Nach Gl. (4.12) darf die Frequenz von einer der beiden Quellen bei einer Grundfrequenz von 67 MHz um maximal 242 Hz verstimmt werden. Führt man den Versuch mit einer fast Stehenden Scherwelle durch, zeigte sich abermals kein Transport.

Die theoretische Vorbetrachtung und die Versuche zeigten, dass eine Oberflächenwelle nicht in der Lage ist durch ihr elektrisches Feld, in Flüssigkeit befindliche geladene oder polarisierbare Moleküle zu transportieren. Dies bedeutet, dass man Ergebnisse die man mit Wasser macht, auf Elektrolyte übertragen darf. Den einzigen Einfluss, den Elektrolyte auf die fluidischen Eigenschaften ausüben können, beruhen auf einer geänderten Dichte (s. Gl. (B.11)) und Schallgeschwindigkeit (ein Beispiel für NaCl s. Gl. (B.12)). Ein Einfluss eines elektrisch induzierten Transportphänomens auf die Fluidik und anderer Versuche kann ausgeschlossen werden.

## 6.3 Akustischer Konzentrator

Bei der Durchführung der Versuche zur Untersuchung des Einfluss' des elektrischen Feldes einer Oberflächenwelle auf Elektrolyte, wurde statt der erwarteten Konzentrationsänderung des Farbstoffes, eine nicht erwartete Konzentrationsänderung an anderer Stelle in der Trenneinheit beobachtet. Im folgenden wurde untersucht, welche Bedingungen zu einer Konzentration in akustisch getriebenen Fluss führen.

Oberflächenwellen sind nicht in der Lage durch ihr elektrisches Feld in Lösung befindliche Moleküle zu transportieren. Der Versuch aus dem vorhergehenden Abschnitt zeigte dies. Bei der Versuchsdurchführung zeigte sich in der Trenneinheit selbst eine lokale Konzentrationsänderung. Die Änderung äußerte sich durch eine Intensivierung der Blaufärbung der Lösung, die Konzentration des Farbstoffs erhöhte sich. Im Laufe des Versuchs wurde es zugelassen, dass die Lösung bei der Versuchsdurchführung verdunstete. Wurde durch die Trenneinheit eine Oberflächenwelle erzeugt und die Lösung verdunstet, war zu sehen, wie sich die Menge der Lösung auf dem Chip verringerte. Ab einem kritischen Volumen, war die Bahn nicht mehr vollständig befüllt. Zwei Flüssigkeitsmenisken zogen über die Bahn. Verringerte sich das Volumen weiter, war die Bahn nur noch in der Nähe der Trenneinheit teilweise befüllt (s. Abb. 6.9). Zu diesem Zeitpunkt zeigte sich bereits eine Intensivierung der Blaufärbung der Lösung im Bereich des Schallpfads. Außerhalb des Schallpfads blieb die Farbintensität augenscheinlich konstant. Beobachtete man den Verdunstungsvorgang weiter, zogen sich die beiden Menisken immer weiter in Richtung zum Schallpfad der Trenneinheit. Sobald einer der beiden Menisken den Rand des Schallpfads erreichte,

stoppt dieser seine Bewegung und verblieb am Rand des Schallpfads. Der zweite Meniskus bewegte sich weiter in Richtung zum Schallpfad. Die Blaufärbung nahm im Bereich des Schallpfads weiter zu. Sobald der zweite Meniskus ebenfalls den Rand des Schallpfads erreichte, begann auch der erste Meniskus sich wieder zu bewegen. Im Schallpfad hatte die Blaufärbung deutlich zugenommen. Die beiden Menisken bewegten sich aufeinander zu bis die Lösung gänzlich verdunstet war. Nach dem Verdunsten der Lösung befand sich in der gesamten Bahn ein blauer Niederschlag, der vom Bromphenolblau verblieb. Genau im Schallpfad der Trenneinheit blieb ein deutlich stärkerer Niederschlag zurück. Weitere Versuche zeigten, dass es keinen Einfluss hatte, ob man Rayleighwellen oder Scherwellen zur Versuchsdurchführung verwendete. Auch war es unerheblich, ob man nur eine Welle erzeugte oder zwei, die im Falle einer Scherwelle auch eine Stehende Welle bildeten. Metallisierte man den Schallpfad der Trenneinheit mit einer 20 nm dicken Titanschicht, die das elektrische Feld der Oberflächenwelle kurzschloss, blieb das Ergebnis wiederum unverändert, wie auch bei Verwendung von Reinstwasser. Die Erzeugung einer Welle in der Trenneinheit dagegen war eine notwendige Bedingung, um die Konzentration des Farbstoffes am Ort des Schallpfads zu erhöhen. Erzeugte man durch die Trenneinheit keine Oberflächenwelle und lies man die Lösung verdunsten, zeigte sich am Ort des Schallpfads keine Konzentrationserhöhung. Der Ort der Verdunstung des letzten Rests der Lösung war auch nicht mehr im Schallpfad, sondern war zufällig über die Bahn verteilt.

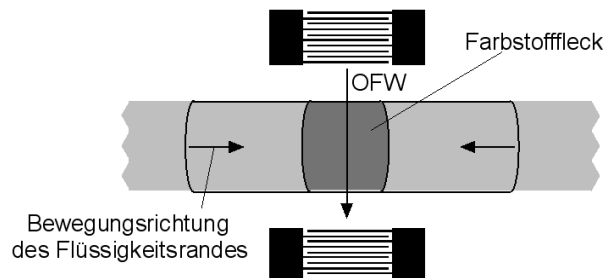


Abbildung 6.9: Der Flüssigkeitsmeniskus überstreicht die gesamte Breite der Fluidischen Bahn bis er den Rand des Schallpfads erreicht. In der Kreuzung zwischen Schallpfad und Bahn bildet sich ein Farbfleck. Zur Skizze siehe den Film [Konzentrator.mpg](#)

Die Versuche zeigten, dass ein Einfluss des elektrischen Feldes auf die ionischen Bestandteile der Lösung ausgeschlossen werden kann. Es muss daher eine mechanische Wechselwirkung sein. Die zeitliche Abfolge der experimentellen Befunde lässt darauf schließen, dass die Lösungseigenschaften des Salzes Bromphenolblau das Ergebnis verursachen. Verdunstete die Lösung, verblieb das Salz in der Lösung. Da die Lösung nicht gesättigt war, konnte sich die Konzentration des Salzes erhöhen, ohne dass es ausfallen musste. Die Konzentration des Salzes in der Lösung nahm während des Verdunstungsvorgangs zu, wodurch die Zunahme der Blaufärbung gegeben war. Am Ort des Schallpfads wurde die intensivste Blaufärbung bzw. auch der stärkste Niederschlag wahrgenommen, weil an dieser Stelle die Lösung zuletzt eintrocknete.

Der Grund warum man am Ort des Schallpfads eine Konzentrationserhöhung erreichen

konnte, lag daran, dass man durch die Oberflächenwelle den Verdunstungsvorgang beeinflusste. Eine Oberflächenwelle kann bei ausreichend großer Amplitude die Oberfläche einer Flüssigkeit verformen (s. Tab. 2.4 und Abb. 2.12). Die Oberflächenwelle hat den Lösungsrest an der Stelle des Schallpfads verformt. Dadurch hat sich lokal der Krümmungsradius der Flüssigkeit verändert. Da der Krümmungsradius außerhalb des Schallpfads kleiner war als im Schallpfad, zog sich der Flüssigkeitsrest derart zusammen, dass sich die Menisken hin zum Rand des Schallpfads bewegten. Wenn einer der beiden Menisken den Rand des Schallpfads und damit den Bereich größeren Krümmungsradius erreichte, verblieb der Meniskus dort, während der andere sich weiter Richtung Schallpfad bewegte. Erst wenn beide Menisken den Bereich des größeren Krümmungsradius erreicht hatten, bewegten sich wieder beide Menisken und der Tropfen verdunstet. Der Einfluss der Oberflächenwelle auf die Morphologie der Flüssigkeitsoberfläche bzw. den Krümmungsradius beeinflusste den Verdunstungsvorgang, der wiederum die Konzentrationsverteilung beeinflusste.

Mit diesem Ergebnis bietet sich als Anwendungsmöglichkeit eine akustische Steuerung für die Eintrocknung eines Analysezwischenresultats an. Da die Position durch die Bestimmung des Kreuzungsortes einer Bahn und eines Schallpfads bestimmt werden kann, kann die Positionierung der Eintrocknung beliebig gewählt werden. Die Eintrocknung kann zu einem späterem Zeitpunkt wieder für Analysezwecke gelöst werden.

# Kapitel 7

## Gelelektrophorese

Die Methode der Gelelektrophorese ist eine der meistangewendeten Methoden der Bioanalytik. Bei Durchführung einer Gelelektrophorese werden die Bestandteile eines Analyten mit einem elektrischen Feld in Bewegung versetzt. Dabei müssen sie ein Medium, das Trennmatrix genannt wird, durchqueren. Aufgrund von Wechselwirkung zwischen der Matrix und den Bestandteilen des Analyten entsteht ein Reibungseffekt, der die Bestandteile nach ihrer Beweglichkeit trennt. In den folgenden Abschnitten wird darauf eingegangen, wie die Funktionen einer Gelelektrophorese miniaturisiert werden können und das System auf Chip als Anwendung verwirklicht werden kann.

### 7.1 Prozessieren eines Milligels

Zur Trennung verschieden langer DNA-Stücke werden Gele als Trennmatrix verwendet. In diesen Gelen besitzen DNA-Stücke unterschiedlicher Länge verschiedene Beweglichkeiten. Dabei gilt, dass ein DNA-Stück umso geringere Beweglichkeit besitzt je länger es ist. Üblicherweise führt man Gelelektrophoresen in Kammern durch, deren typische Ausdehnung im Bereich von 10 cm ist. Die Untersuchung mittels Gelelektrophorese ist eine der zentralen Methoden der Bioanalytik. Daher wird die Gelelektrophorese eine der Anwendungen sein, die man vornehmlich auf einem lab-on-a-chip finden wird.

#### 7.1.1 Standardprozessierung eines Agarosegels

Zur Durchführung eines Gelelektrophoreseprozesses muss man auf einem Chip ein Gel als Trennmatrix aufbringen. Um ein Gel herzustellen, werden verschiedene Materialien verwendet. Zur Trennung von DNA ist Agarose [Hjerten61], ein Zucker der aus Algen gewonnen wird, ein geeigneter Stoff. Agarose wird nach einem Standardrezept zu einem Gel gegossen. Vor der Herstellung eines Agarosegels muss man abschätzen, welche Längen die zu trennenden DNA-Stücke in etwa haben, da der Gewichtsprozentanteil der Agarose am Gel darüber entscheidet, ob das Gel zur Trennung geeignet ist.

Zum Gießen eines 1,5%igen Agarosegels, gibt man z.B. 0,3 g Agarosepulver zu 20 ml

Agarosekonzentration in Gewichtsprozent	DNA-Fragmentlänge in kbp
0,3	5-60
0,5	1-30
0,7	0,8-12
1,0	0,5-10
1,2	0,4-7
1,5	0,2-3
2,0	0,1-2

Tabelle 7.1: Übersicht über den Zusammenhang zwischen DNA-Fragmentlänge und der notwendigen Agarosekonzentration bei Trennung der Fragmente in einem Agarosegel.

Wasser. Diese trübe Suspension wird solange gekocht, bis die Lösung klar ist. Die heiße Lösung wird in den Spalt zwischen zwei Platten gegossen, wo die Lösung solange verbleibt, bis sie geliert und fest wird. Nach vorsichtigem Entfernen der Platten hat man ein Agarosegel.

Für die alltägliche Verwendung im Labor finden derzeit Gel mit einer Größe von etwa 10 cm mal 10 cm ihren Einsatz. Zur Durchführung einer Gelelektrophorese auf einem Chip sind dies viel zu große Dimensionen. Um kleinere Gele zu erhalten, wurde ein großes Agarosegel gegossen und dieses bei Bedarf mit einem scharfen Messer in geeignete kleine Stücke zurecht geschnitten. Das große Vorratsgel konnte man unter Wasser für mehrere Wochen aufbewahren, so dass man vor einem Versuch nicht stets ein neues Gel gießen musste. Die Aufbewahrung unter Wasser war notwendig, da sonst das Wasser im Gel verdunstete und sich dieses mit der Zeit änderte bzw. austrocknete und unbrauchbar wurde. Eine neuerliche Erhöhung des Wassergehalts des Gels ist nicht möglich. Bei der Durchführung von Experimenten konnte dies zu Problemen führen oder änderte zumindest die Versuchsbedingungen und führte in letzter Konsequenz dazu, dass die Versuche nicht reproduzierbar waren.

Bei der Durchführung länger dauernder Experimente erwies es sich als sehr zweckmäßig diese in einer gesättigten Atmosphäre durchzuführen. Dabei wurde in geringer Entfernung zum Experiment ein Wassertropfen platziert und das Experiment abgedeckt. Der Wassertropfen sorgte für eine ausreichend hohe Luftfeuchtigkeit, so dass das Gel während der Versuchsdauer keine signifikante Veränderung erfuhr. Diese Methode eignete sich auch dazu Gele bei 25°C Umgebungstemperatur für bis zu 24 Stunden zu lagern.

### 7.1.2 Milligele zur Anwendung auf einem Chip

Bei der Herstellung eines Milligels ist das Zuschneiden eines Gels keine elegante Methode. Deutlich eleganter ist es das Gel direkt in die geeignete Form zu gießen. Da die Größenordnung für Gele für einen Chip unter 1 cm liegen soll, müssen die Werkzeuge und auch die Herstellungsweise daran angepasst sein.

Zum Herstellen klein dimensionierter Gele wurde eine Agaroselösung vorbereitet und diese



auf einer Heizplatte unter rühren bei 75°C warm gehalten. Die Lösung war dabei abgedeckt, damit das verdunstende Wasser nicht entwich und die Agarosekonzentration der Lösung konstant blieb. Das Substrat, auf welches das Gel gegossen werden sollte, wurde ebenfalls auf die Heizplatte gelegt und erwärmt. Auf das Substrat wurden Abstandshalter gelegt und darauf ein Glas, so dass ein Spalt entstand, in den das Gel eingespritzt wurde. Zum Einspritzen des Gels wurde eine Pipette verwendet, welche zuvor in einem Wasserbad erwärmt wurde<sup>1</sup>. Mit der erwärmten Pipette wurde Agaroselösung aufgenommen und am Spaltende pipettiert, das abgedeckte Substrat verblieb dabei auf der Heizplatte. Die Lösung wurde durch Kapillarkräfte in den Spalt gezogen. Dabei war darauf zu achten, dass keine Luftblasen eingeschlossen wurden. Es wurde solange Agaroselösung in den Spalt hinzugegeben bis der Spalt vollständig gefüllt war. Wenn der Spalt wie gewünscht vollständig mit Lösung gefüllt war, wurde das Substrat mitsamt der Abdeckung von der Heizplatte genommen und auf einen Kühlkörper gestellt, bis es abgekühlt war. Dabei war darauf zu achten, dass auch das Gel im Inneren ausreichend abkühlte, da sonst das Gel beim anschließenden Abziehen des abdeckenden Glases noch nicht vollständig geliert war und zerlief. Beim Entfernen der Abdeckung wurde zuerst das Glas vorsichtig heruntergezogen. Dabei konnte es passieren, dass das Gel zerriss, weil es zu stark an der hydrophilen Oberfläche des Glases haftete. Wurde ein hydrophobes Glas verwendet, konnte diese Gefahr deutlich reduziert werden. Nach dem Entfernen des Glases wurden die beiden Abstandshalter seitlich weggezogen. Das Substrat mitsamt dem Gel wurden bis zur Durchführung des Versuches unter Wasser aufbewahrt.

Als Gussform fand auch ein gefräster Plexiglaskörper Verwendung, weil eine Plexiglasoberfläche von Natur aus hydrophob ist. Dabei wurde wie zuvor die Form des Gels negativ in den Plexiglaskörper gefräst. Beim Entfernen der Gussform musste diese ebenfalls vorsichtig abgezogen werden. Ein Abheben der Form war nicht möglich, da dabei ein Unterdruck entstand, der das Gel vom Substrat mit herunterzog oder zerriss. Bei dieser Vorgehensweise konnte man sehr gut Gele in linearer Geometrie herstellen.

Beim Gießen des Gels wurde ein Teil davon durch Kapillarkräfte auch in den engen Spalt zwischen Form und Substrat gesaugt. Beim Gießen eines Gels auf ein kaltes Substrat konnte dies durch eine hydrophobe Oberflächenbeschichtung verhindert werden. Das Benetzungsverhalten eines Agarosegels ist ähnlich zu dem von reinem Wasser. Eine mit Octadecyltrichlorsilan (OTS) silanierte, hydrophobe Oberfläche wird von einer Agaroselösung nicht benetzt. Dies konnte durch ein einfaches Experiment verdeutlicht werden. Zwei Gläser wurden nebeneinander gelegt. Auf einem der beiden Gläser wurde die Agaroselösung pipettiert bis die Lösung die Oberfläche großflächig benetzte und sich bis zu dem Übergang der beiden Gläser ausbreitete. Es wurde dann das Verhalten der Agaroselösung an der Grenzlinie zwischen den beiden Gläsern beobachtet. In Tabelle 7.2 sind die Beobachtungen zusammengefasst.

Das Benetzungsverhalten einer Agaroselösung auf einem kaltem Substrat entsprach dem von Wasser. Auf einem erwärmten Substrat verschwand dieser Kontrast teilweise.

---

<sup>1</sup>Bei Verwendung einer kalten Pipette und Substrat besteht die Gefahr, dass die Agaroselösung zu früh geliert und der Herstellungsprozess scheitert.

Benetzungseigenschaft		Beobachtung
Glas a	Glas b	
hydrophil	hydrophil	Es wurde auf Glas a pipettiert. Beim Erreichen der Grenzlinie passierte die Agaroselösung. Der schmale Spalt zwischen beiden Gläsern wurde überspannt.
hydrophil	hydrophob	Die Lösung wurde wiederum auf Glas a pipettiert. Als die Lösung die Grenzlinie erreichte, stoppte die Ausbreitung in Richtung zu Glas b. Währenddessen sich an der Grenzlinie der beiden Gläser eine gerade Benetzungslinie des Agarosetropfens ausbildete, breitete sich die Agaroselösung nur auf Glas a aus.
hydrophil	hydrophob	Die Lösung wurde auf Glas b pipettiert. Die Lösung breitete sich auf Glas b aus und erreichte die Grenzlinie zu Glas a. Bei Erreichen der Grenzlinie überschritt die Lösung die Grenzlinie. In diesem Augenblick floss die gesamte Lösung fast vollständig von Glas b nach Glas a.

Tabelle 7.2: Zusammenfassung der Beobachtung zum Benetzungsverhalten von Agaroselösung verschiedener Oberflächen.

Die hergestellten Gele konnten zur Lagerungen von den Substraten gelöst werden. Die Gele wurden dann unter Wasser gelagert und bei Verwendung wieder auf das Substrat gelegt.

## 7.2 Physikalische Bedeutung der Gelelektrophoresekomponenten

Bei der zur Zeit üblichen Vorgehensweise für eine Gelelektrophorese finden Gelelektrophoresekammern (s. Abb. 7.1) Verwendung. In einer solchen Kammer befindet sich ein Gel in einer stromdurchflossenen Pufferlösung. Seitlich angebrachte Elektroden erzeugen ein Feld und verursachen einen Stromfluss im Puffer. Im felddurchsetzten Puffer und Gel wird in das Gel in vorbereitete Taschen die DNA-Lösung pipettiert. Unter Einfluss des Feldes wandert die DNA entgegen des Feldverlaufs zur positiven Elektrode. Wegen der unterschiedlichen Beweglichkeit verschieden langer DNA-Fragmente trennen sich diese im Gel auf. Das Verständnis für den Nutzen der einzelnen Komponenten ist notwendig, um das System für eine akustisch getriebene Fluidik auf einen Chip zu verkleinern.

In einer Gelelektrophoreskammer finden Platindrähte als Elektroden Verwendung, weil sich diese durch Elektrolyse nicht zersetzen. Die Pufferlösung ermöglicht den Stromfluss

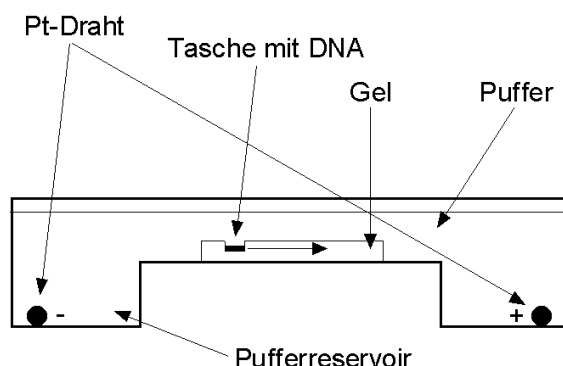


Abbildung 7.1: Querschnitt durch eine Gelelektrophoresekammer; das Gel liegt vollständig in der Pufferlösung. Die Tasche wird mit DNA-Lösung beladen, die aufgrund höherer Dichte im Puffer auf den Boden der Tasche absinkt. Legt man eine Spannung an den beiden Platindrähten an, entsteht ein Feld in welchem die DNA wandert. Zugleich fließt Strom im Puffer. Durch das Pufferreservoir vermeidet man zu große Ionenkonzentrationsänderungen, welche das Feld abschwächen.

zwischen beiden Elektroden. Ohne einen fließenden Strom würden die Elektroden polarisieren. Dabei sammeln sich an jeder Elektrode die entgegengesetzt geladenen Ionen der Lösung und bauen ein Gegenfeld auf, bis das anliegende Feld aufgehoben ist. Dies motiviert auch die Pufferreservoirs, die sich bei jeder Elektrode befinden. Eine große Menge des Puffers dient dazu die Konzentrationsänderungen aufgrund der elektrophoretischen Drift der Ionen klein zu halten. Der Polarisierung der Elektroden wird damit teilweise entgegengewirkt. Die DNA befindet sich in einer Lösung aus Salzen – unter anderem Bromphenolblau und Xylencyanol – und Glycerin. Das Glycerin erhöht die Dichte der Lösung, damit die DNA-Lösung in die Geltasche hinabsinkt und sich nicht diffusiv mit dem Puffer mischt. Die beiden genannten Salze sind intensiv blau färbende Salze, die elektrophoretisch beweglich sind. Sie bieten einem während der Elektrophorese Orientierungspunkte, wo im Gel die DNA läuft.

Agarosekonzentration in Gewichtsprozent	Beweglichkeit umgerechnet in Fragmentlänge für	
	Bromphenolblau in bp	Xylencyanol in kbp
0,5	1000	10
0,7	700	6
1,0	300	3
1,2	200	1,5
1,5	120	1
2,0	<100	0,8

Tabelle 7.3: Beweglichkeiten der Farbstoffe Bromphenolblau und Xylencyanol umgerechnet in die entsprechende Fragmentlänge in Abhängigkeit von der Agarosekonzentration.

## 7.3 Planare Geometrie der Gelelektrophorese

Für die Verwirklichung einer Gelelektrophorese auf einem Chip wurde als erstes untersucht, wie eine Elektrophoreseeinheit planar verwirklicht werden kann. Durch diese Untersuchung gewinnt man Einblick, ob Chipstrukturen für eine Gelelektrophorese auf einem Oberflächenwellenchip ohne Technologiebruch erzeugt werden können.

Dazu wurden auf einem Glas Elektroden aufgedampft. Die Elektroden bestanden aus 80 nm Titan und 40 nm Gold. Dabei erfüllt die Titanschicht zwei Funktionen. Zum einen als Elektrode und auch als Haftvermittler für die Goldschicht. Die Goldschicht wiederum wurde auch als Elektrodenmaterial verwendet und schützte aufgrund seines edlen Charakters zugleich das Titan, da reine Titanelektroden durch Elektrolyse schnell zersetzt werden.

Auf das Substrat mit den Elektroden legte man ein Agarosegel. In das Gel wurde ein kleines Loch geschnitten, das die Funktion der Geltasche übernahm oder man nahm ein Gel bei dem bereits durch den Herstellungsprozess eine Tasche vorhanden war. Auf das Gel kam TBE-Puffer. Beim Anlegen einer Spannung an die Elektroden setzte sofort Blasenbildung an beiden Elektroden ein. Die blaue Farbe der DNA-Lösung begann ebenfalls in Richtung zur positiven Elektrode zu wandern. Bei einem Elektrodenabstand von 2 cm und einer angelegten Spannung von 32 V konnte man spätestens nach 6 Minuten eine Trennung der beiden blauen Salze erkennen. Nach 14 Minuten hatte das Bromphenolblau das Gel fast vollständig durchlaufen und der Versuch wurde beendet. Die beiden Salze waren deutlich voneinander getrennt. Die positive Elektrode wurde in der Zeit als Spannung anlag deutlich angegriffen. Bei Wiederholung des Versuchs mit einer längeren Trennstrecke von 8 cm konnten auch die DNA in der Lösung deutlich aufgetrennt werden. Die DNA-Banden wurden mit Silberfärbung sichtbar gemacht. Das Rezept zur Silberfärbung lautet:

Gel drei mal mit Reinstwasser waschen  
5 Minuten in 1%ig AgNO<sub>3</sub>-Lösung/0,1%ig Formaldehydlösung legen  
Gel drei mal mit Reinstwasser waschen  
mit NaOH/Formaldehydlösung entwickeln, bis die Banden sichtbar sind  
Gel drei mal mit Reinstwasser waschen

Es zeigte sich, dass die Verwendung planarer Elektroden in der Gelelektrophorese möglich ist. Physikalisch interessant, ist die Ausbreitung des elektrischen Feldes zwischen den beiden Elektroden.

Die Berechnung des Verlaufs des elektrischen Feldes in einem linearen Gel ergab, dass sich zwischen planaren Elektroden im Gel ein homogenes elektrisches Feld (s. Abb. 7.2) ausbreitet, damit standen prinzipiell alle Komponenten zur Verfügung eine Gelelektrophoreseeinheit auf einem Oberflächenwellenchip mit der Fluidik zu vereinigen. Zur Steigerung der Qualität wurde untersucht, ob eine Passivierung der Elektroden mit Quarz die Korrosion der Elektroden verhindern kann. Die Quarzschicht passivierte die Elektroden teilweise und verringerte die Auswirkungen der Elektrolyse. Es war auch möglich die Qualität der Quarzschicht derart zu erhöhen, dass sie völlig dicht wurde. Dies unterband aber den Strom-

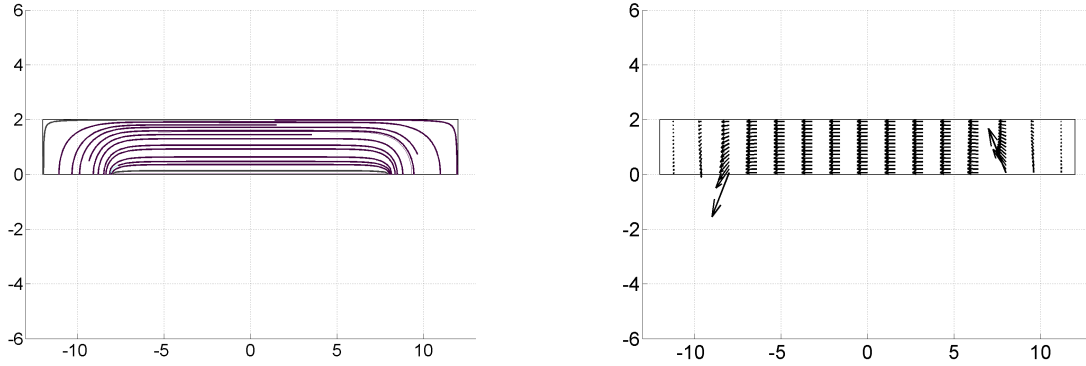


Abbildung 7.2: Darstellung des elektrischen Feldes in einem Gel bei Seitenansicht, links die Feldlinien, rechts das Vektorfeld; das Gel liegt auf planaren Elektroden, die sich mit den Stecken  $[(-12/0);(-8/0)]$  und  $[(12/0);(8/0)]$  decken. Das elektrische Feld im Inneren des Gels ist bereits bei geringer Entfernung zu den Elektroden homogen. Die Berechnung des Feldes wurde mit der Software FEMLAB 2.3 durchgeführt.

fluss und die Elektroden polarisierten, wodurch die Elektrophorese zum Erliegen kam. Beim Vorgang der Polarisierung lagern sich entgegengesetzt geladene Ionen an den Elektroden an, bis sich ein zum externen Feld  $E_{ext}$  gleich großes Gegenfeld  $E_{ind}$  aufgebaut hat. Die beiden Felder heben sich gegenseitig auf und die Elektrophorese kommt zum Erliegen. Ein Abbau der Gegenionen ist nicht möglich da die Isolierung der Elektrode eine Rekombination verhindert. Zur Abschätzung einer Zeitkonstante der Polarisierung betrachtet man das resultierende Feld  $E_{res}$ , in dem sich die Ionen bewegen. Dabei gilt

$$E_{res} = E_{ext} - E_{ind} = \frac{U}{d} - \frac{D}{\varepsilon\varepsilon_0} = \frac{U}{d} - \frac{Q(t)}{A\varepsilon\varepsilon_0} \quad (7.1)$$

mit der angelegten Spannung  $U$ , dem Elektrodenabstand  $d$  und der dielektrischen Konstanten  $\varepsilon$  des Gels. Das resultierende Feld verursacht einen Strom

$$j = \sigma E_{res} \quad . \quad (7.2)$$

Für einen Aufbau mit planaren Elektroden gilt, wenn der Abstand der beiden Elektroden groß im Vergleich zu ihrer Ausdehnung ist, dass die Feldlinien senkrecht zur Querschnittsfläche des Gels verlaufen. Für den Stromfluss gilt somit

$$I = jA = \sigma E_{res}A \Rightarrow E_{res} = \frac{\dot{Q}(t)}{\sigma A} \quad , \quad (7.3)$$

womit man die Differentialgleichung

$$\dot{Q}(t) - \sigma U \frac{A}{d} + \frac{\sigma}{\varepsilon\varepsilon_0} Q(t) = 0 \quad (7.4)$$

mit der Lösung

$$Q(t) = \underbrace{\varepsilon\varepsilon_0 U \frac{A}{d}}_{Q_0} \left(1 - e^{-\frac{\sigma}{\varepsilon\varepsilon_0} t}\right) \quad (7.5)$$

erhält. Als Zeitkonstante ergibt sich

$$\tau = \frac{\varepsilon\varepsilon_0}{\sigma} \quad . \quad (7.6)$$

Führt man die Leitfähigkeit für einen 1:1-Elektrolyten auf die Beweglichkeit zurück, gilt

$$\sigma = N_A e c (\mu_+ + \mu_-) \quad . \quad (7.7)$$

Mit typischen Werten eines 1 molaren 1:1-Elektrolyten und  $\mu_+ + \mu_- = 10^{-7} \frac{\text{m}^2}{\text{Vs}}$  gilt für die Zeitkonstante  $\tau = 73 \text{ ps}$ . Diese Zeitkonstante ist so klein, dass man bei typischen Versuchsdauern in der Größenordnung von Minuten sagen kann, dass die Polarisierung instantan stattfindet und man einen beständigen Stromfluss benötigt. Bei fließendem Strom können über Redoxreaktionen, die Ionen der elektrolytischen Lösung rekombinieren und ein Aufbau eines Gegenfeld wird unterbunden. Um einer Polarisierung der Elektroden entgegenzuwirken, braucht man den Stromfluss und muss eine Korrosion der Elektroden durch Elektrolyse hinnehmen. In einer Vielzahl anderer Arbeiten, die sich mit Elektrophoresen und Elektrolyse beschäftigen, wird die Elektrolyse als Problem angesehen. Dabei wird übersehen, dass sie der Grund für eine erfolgreiche Durchführung einer Elektrophorese ist. Dagegen stört die begleitende Blasenbildung einen Versuch bedeutend stärker. Dies kann in einem geschlossenem Fluidischen System zu Fehlfunktionen führen. Bei einem akustisch getriebenen System, das halboffen ist, ist dies aber nicht der Fall, weil die entstehenden Gase entweichen können.

Die Richtung des Stromflusses hat ebenfalls einen Einfluss auf die Ausbreitung des elektrischen Feldes. Mit einem einfachen Versuch ließ sich dies zeigen. Anstatt eines Gels in linearer Geometrie wurde ein Gel mit einem Knick verwendet (s. Abb. 7.3. Auf das Gel wurde der Puffer gegeben, so dass bei der Versuchsdurchführung nur das Gel benetzt war. In das Gel wurde ein Tropfen Bromphenolblau-Lösung gegeben. Mit Anlegen einer Spannung an die Elektroden, lief das Bromphenolblau von der negativen Elektrode weg. Am Knick angekommen, zeigte sich eine deutliche geradlinige Bande und das Bromphenolblau folgte dem Verlauf des Gels, obwohl es nicht der kürzeste Weg zwischen den Elektroden war und blieb innerhalb des Gels. Im Zeitraum der Drift der Bande um die Ecke des Knicks, verlor sich die geradlinige Geometrie der Bande und veränderte sich zu einer langgezogenen Kurve. Das Bromphenolblau konnte auf diese Weise um die Ecke des Knicks gelenkt werden. Es zeigte sich, dass mit dem Puffer die Ausbreitung des elektrischen Feldes definiert werden kann.

Bei der Durchführung einer planaren Gelelektrophorese ist auch die Position der Tasche entscheidend, ob der Versuch erfolgreich durchgeführt werden kann. Wie man in Abb. 7.2 sehen kann, ist das elektrische Feld im Gel an den Stellen nahe der Elektroden nicht

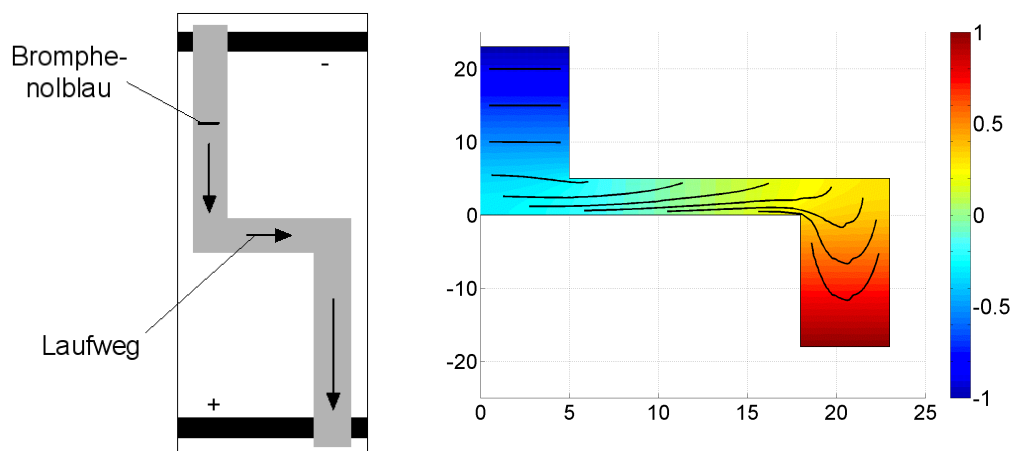


Abbildung 7.3: Versuchsaufbau zur Untersuchung der elektrophoretischen Bewegung in einem nicht geradlinigen Gel, die Ausbreitung des Feldes bleibt durch die Pufferlösung auf den Ort des Gels beschränkt. Ähnlich wie Elektronen in einem gebogenen Draht, der die Richtung des Stromfluss definiert, folgen die ionischen Bestandteile der Elektrophorese dem Gel/Puffer-System. Da es an der Innenecke des Gels zu einer Feldüberhöhung kommt, läuft die Bande in der Innenkurve dem Teil der Bande in der Außenkurve voraus, weil es auf dem kürzeren Weg auch noch das stärkere Feld sieht. Die Skala rechts neben dem Bild gibt das Maß für das elektrische Potential im Gel an.

homogen. Dies warf die Frage auf, an welcher Stelle im Gel die Tasche platziert werden darf, so dass die DNA-Banden in guter Qualität erzeugt werden können.

Wie man anhand der Simulation zu Abb. 7.4 sehen kann, darf die Position der Tasche nicht mit dem Ort der Elektroden identisch sein. Befindet sich die Tasche hingegen in geringer Entfernung zu den Elektroden, läuft die DNA in einem homogenen Feld und man erhält bei der Versuchsdurchführung scharfe, geradlinige Banden. All die durchgeführten Betrachtungen müssen berücksichtigt werden, wenn eine Gelelektrophorese für die Anwendung auf einem Chip miniaturisiert werden soll.

## 7.4 Chip-Gelelektrophorese

Zur Untersuchung einer Lösung auf einem Chip, deren Bestandteile elektrophoretisch trennbar sind, muss die Anordnung für eine Gelelektrophorese auf eine Größenordnung unter 1 cm miniaturisiert werden. Im folgenden wurde untersucht, wie sich eine Gelelektrophorese in dieser Größenordnung verhält.

Die Miniaturisierung bringt es mit sich, dass die Metallisierung eines Chips kleiner und so auch empfindlicher gegenüber Elektrolyse wird. Um die Auswirkungen der Elektrolyse zu mildern wurde als Elektrodenmaterial ein Edelmetall verwendet. In konventionellen Gelelektrophoreseskammern handelt es sich dabei um Platindrähte. Auf der Oberfläche ei-

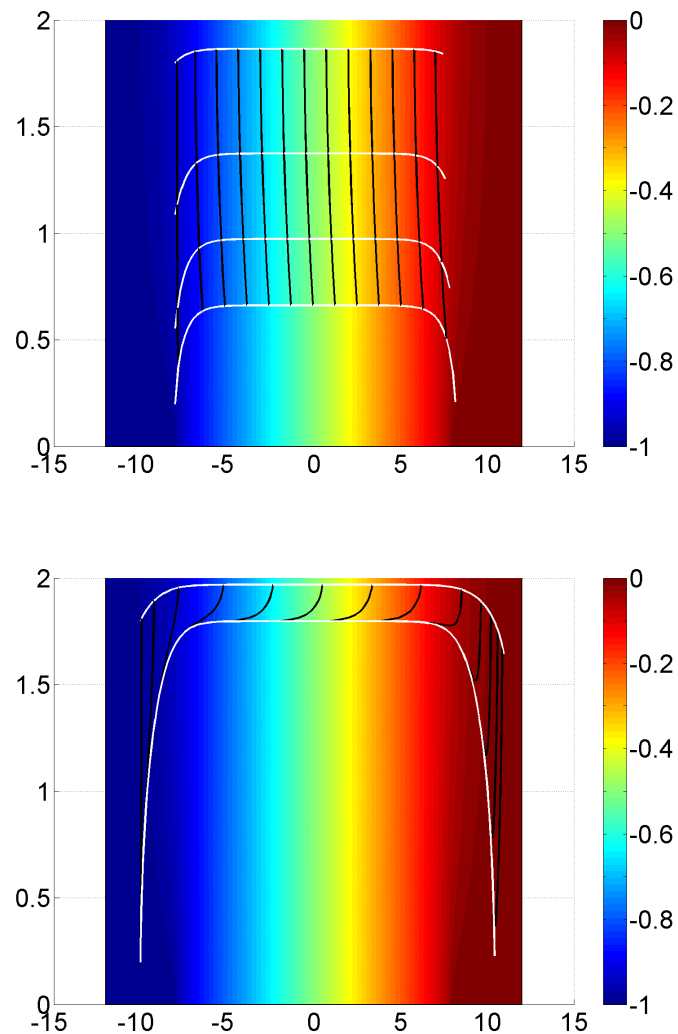


Abbildung 7.4: Mit der Software FEMLAB 2.3 und MATLAB 6.5 wurde die Bewegung der DNA im Gel berechnet. Man sieht im seitlichen Querschnitt durch das Gel den Laufweg (weiß) der DNA entlang der Feldlinie. Dazu sind mit schwarzer Farbe die Orte gleicher Zeit eingezeichnet, die auch das Aussehen und die zeitliche Entwicklung einer DNA-Bande wiedergeben. Die Elektroden lagen bei dieser Simulation entlang der Strecken  $[(-12/0);(-8/0)]$  und  $[(12/0);(8/0)]$ . Im oberen Bild wurde die Startposition bei  $x=-8$  vorgegeben. Die DNA bewegt sich immer im Bereich des homogenen Feldes. Es ergeben sich geradlinige Banden. Im unteren Bild, wurde die Startposition bei  $x=-10$  vorgegeben. Die DNA wird bei dieser Konfiguration erst an die Oberfläche des Gels gedrängt werden und die Banden verbreitern sich massiv, können sich sogar überlappen, so dass eine Trennung nicht beobachtet werden kann. Die Skala rechts neben den Bildern gibt das Maß für das elektrische Potential im Gel an.



nes Oberflächenwellenchips aus Lithiumniobat wurden Goldelektroden aufgebracht. Da mit Gold ebenfalls die Schallwandler für die Oberflächenwellenerregung prozessiert werden konnten, ergab sich die Möglichkeit eine Gelelektrophorese- und Oberflächenwellenstruktur ohne Technologiebruch im selben Prozessschritt herzustellen.

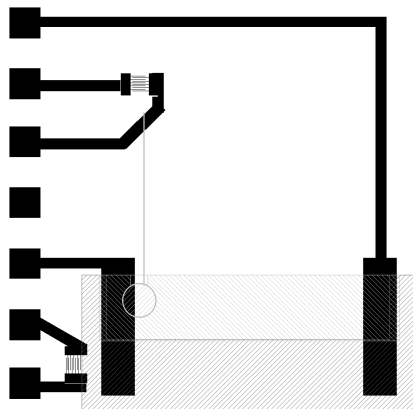


Abbildung 7.5: Darstellung eines Gelelektrophoresechips mit akustisch getriebener Fluidik auf Oberflächenwellenbasis. Die schwarzen Flächen stellen die Metallisierungen dar, hellgrau schraffiert das Gel, dunkelgrau schraffiert die hydrophilen Bereiche der Chipoberfläche, die restliche Oberfläche war hydrophob.

Weil der Chip zum Schutz der Elektroden mit Quarz beschichtet wurde, hatte man einen weiteren Vorteil. Die Oberflächenchemie des Chips war nach dem Passivierungsschritt wieder einheitlich. Bei der Herstellung der Fluidischen Strukturen, mit deren Hilfe ein Tropfen zum Gel gefahren werden soll und so das Gel beladen wird, konnten mit einem Beschichtungsschritt mit OTS hergestellt werden<sup>2</sup>.

Auf die Elektrophoreseeinheit wurde ein 2%-iges Agarosegel gelegt, das eine Aussparung hatte, die die Funktion der Tasche übernahm. Auf das Gel wurde eine Pufferlösung (TBE) gegeben, die den Stromfluss aufrecht erhielt. Die gleiche Pufferlösung wird auch bei konventionellen Gelelektrophoresen verwendet. Damit sich die Pufferlösung nicht über die gesamte Chipoberfläche ausbreitete, war eine virtuelle Wanne durch eine Modulation des Benetzungswinkels definiert. In dieser Wanne benetzte die Pufferlösung beide Elektroden und einen Rand des Gels.

Zur Versuchsdurchführung, wurde auf den Chip ein Tropfen einer wässrigen Lösung aus Bromphenolblau und Xylencyanol pipettiert. Anschließend wurde der Tropfen durch eine Oberflächenwelle angetrieben über Fluidische Schienen zum Gel in die Tasche und so das Gel beladen. Damit der Tropfen nicht durch Kapillarkräfte zwischen das Gel und den Chip gesaugt wurde, war die Oberfläche des Chips, auf der das Gel lag, hydrophob beschichtet. Im Gegensatz dazu war die Oberfläche am Ort der Tasche hydrophil, wodurch der Tropfen

<sup>2</sup>Hätte die Chipoberfläche aus Lithiumniobat und Gold bestanden, hätte man mit zwei Beschichtungen arbeiten müssen. Da OTS auf Goldoberflächen nicht bindet, hätte ein zweiter Beschichtungsschritt mit einem Thiol erfolgen müssen.

in der Tasche fixiert und die Ausgangsposition der Gelelektrophorese definiert war. Zur Durchführung der Gelelektrophorese wurde die Oberflächenwelle, die den Tropfen in die Taschen geschoben hatte wieder ausgeschaltet und an die Goldelektroden eine Gleichspannung angelegt. Mit Anlegen der Gleichspannung bildeten sich Blasen und der Farbstoff des Tropfens driftete in das Gel. Da die salzigen Bestandteile der Lösung in Wasser eine hohe Beweglichkeit besitzen, drifteten die Farbstoffe zeitgleich in das Gel. Zum Beginn der Trennung lagen scharfe geradlinige Banden vor. Im Gel drifteten die Farbstoffe weiter und trennten sich aufgrund ihrer unterschiedlichen Beweglichkeit. Die Trennung erfolgte dabei im Zeitraum von 1 Minute und das Gel war nach spätestens 5 Minuten vom Bromphenolblau vollständig durchlaufen. Das Xylencyanol blieb erwartungsgemäß etwas zurück. Beide Farbstoffe waren zu deutlichen, geradlinigen Banden getrennt.

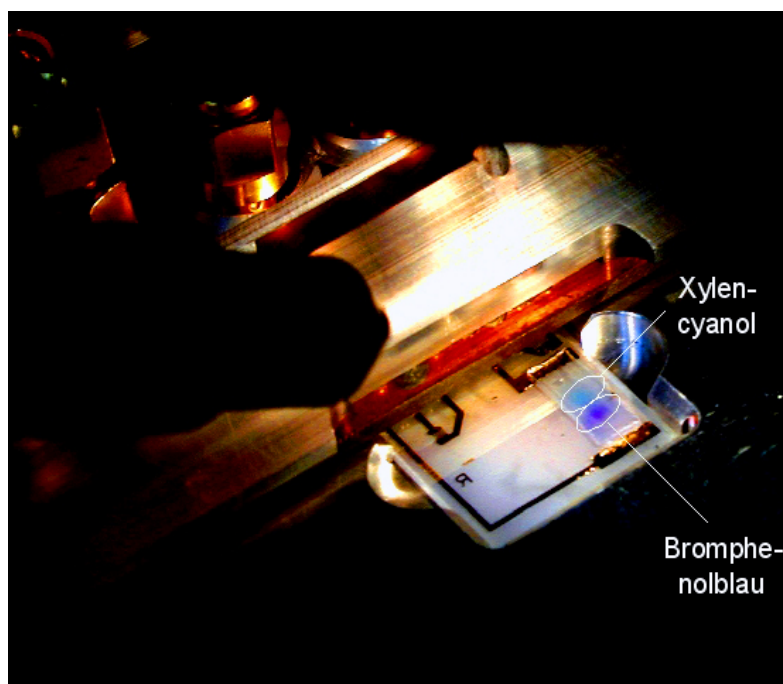


Abbildung 7.6: Ergebnis einer Auf-Chip-Gelelektrophorese mit den beiden Farbstoffen Bromphenolblau und Xylencyanol. Das Bromphenolblau ist dem Xylencyanol deutlich vorausgelaufen und es ergab sich eine Trennung der beiden Komponenten. Siehe dazu auch den Film [OnChipElektrophorese00.mpg](#)

Das Ergebnis zeigt auf, dass eine Auf-Chip-Gelelektrophorese ohne Technologiebruch auf einem Chip für akustisch getriebene Fluidik verwirklicht werden kann.

Weil ein Chip im wesentlichen eine zweidimensionale Struktur aufweist, sind die Möglichkeiten für ein Design eines Chips eingeschränkt. Ein mögliches Problem an dieser Stelle kann die Kreuzung einer Leiterbahn mit der Trennstrecke der Gelelektrophorese sein oder die Integration eines Nachweissystems. Kreuzt oder befindet sich eine metallische Leiterbahn in der Trennstrecke, beeinflusst dies den Verlauf des elektrischen Feldes im Gel. Ist die laterale Ausdehnung der Leiterbahn parallel zum elektrischen Feld klein gegen die Dicke

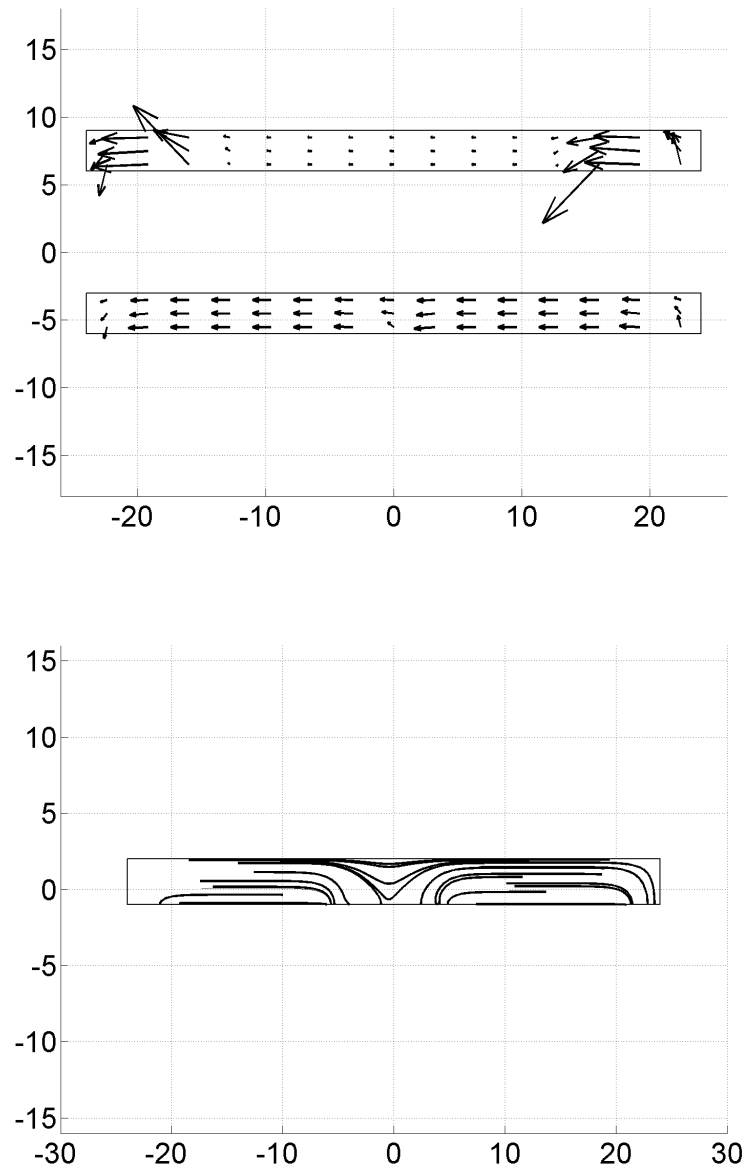


Abbildung 7.7: Befindet sich eine Leiterbahn unterhalb des Gels, verzerrt sich dadurch das elektrische Feld im Gel. *oben*: In der Seitenansicht sieht man, dass sich eine Störung besonders ausgeprägt auswirkt, wenn sie sich nicht mittig zwischen den Elektroden befindet. In der oberen Geometrie befanden sich Störungen auf den Strecken  $[(-16/0);(-15/0)]$  und  $[(15/0);(16/0)]$ . In der unteren Geometrie befand sich die Störung auf der Strecke  $[(-1/0);(1/0)]$ . *unten*: Die Feldlinien werden durch Störungen zum Substrat hingebogen. In diesem Beispiel befinden sich auf der Strecke  $[(-6/0);(6/0)]$  gleich 6 Störungen symmetrisch verteilt. Die Feldlinien werden nicht nur zum Substrat hingebogen, sondern enden zum Teil auch dort.

und die Länge des Gels bleibt der Störeinfluss gering. Dabei muss die Bedingung erfüllt sein, dass die Störung das Gel in der Mitte kreuzt. Andernfalls wird das elektrische Feld massiv abgeschwächt (s. Abb. 7.7). Die Störung der Leiterbahn äußert sich dabei durch eine Verbiegung der Feldlinien hin zur Leiterbahn. Für eine elektrophoretische Trennung bedeutet dies, dass an der Stelle der Leiterbahn kein homogenes Feld herrscht.

Eine leitfähige Störung beeinflusst das Feld so, dass sich die substratnahen Feldlinien hin zur Störung verbiegen. Für ein Teilchen, das sich entlang einer solchen Feldlinie bewegt, bedeutet das, dass es nicht mehr die Trennstrecke durchläuft (s. Abb. 7.8). Bewegt sich ein Teilchen entlang einer verbogenen aber durchgängigen Feldlinie, läuft es gegebenenfalls Teilchen hinterher, die entlang einer weniger gekrümmten Feldlinie laufen.

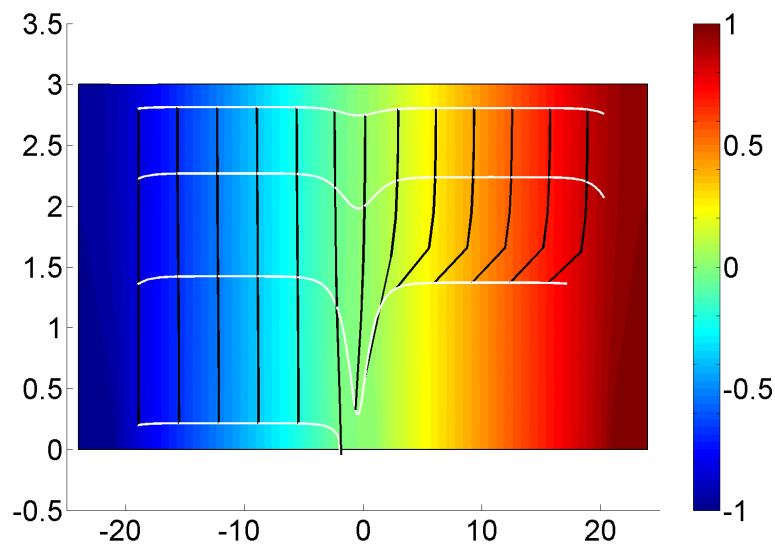


Abbildung 7.8: Die Teilchen bewegen sich entlang der Feldlinien (weiß). Zu gleichen Zeiten (schwarze Linien) haben sie das Gel unterschiedlich weit durchlaufen. Bei Beobachtung der Trennung von oben, sieht man eine Linienverbreiterung. Die Skala rechts neben dem Bild gibt das Maß für das elektrische Potential im Gel an.

# Kapitel 8

## Ausblick

### 8.1 Oberflächenwelle und Moleküle

Die Versuche zum Ausrichten von Carbonnanotubes (NT) zeigten, dass es möglich ist sie mit einer Oberflächen- oder Scherwelle auszurichten. Zudem wurde mit dieser Methode eine große Anzahl NT's gleichzeitig ausgerichtet.

Derzeit finden NT's keine Verwendung in elektronischen Schaltkreise auf Molekülbasis, weil es bisher keine geeigneten Methoden die Position von NT's gezielt zu beeinflussen. Dies stellt zum jetzigen Zeitpunkt das größte Hindernis für ihre Verwendung dar, obwohl sie so hervorragende Leitungseigenschaften besitzen, wie kaum ein anderes Material. Das Ausrichten von NT's mit Oberflächen- oder Scherwellen bietet an dieser Stelle einen viel versprechenden Ansatz.

So wurden bereits Versuche an NT's unternommen, die zuvor mit einer Oberflächenwelle gezielt angeordnet wurden. Bei diesen Versuchen wurden einzelne NT's zuerst ausgerichtet und anschließend elektrisch kontaktiert [Ebbecke04]. Die kontaktierten NT's wurden darauf an ein Strommessgerät angeschlossen und es wirkte erneut eine Oberflächenwelle auf das NT. Ein Teil des Impulses der Oberflächenwelle übertrug sich auf die Elektronen des NT, wodurch sich ein Strom messen lies (s. Abb. 8.1). Durch die Wahl einer geeigneten Geometrie, bei der die Kontakte genau eine halbe Wellenlänge der Oberflächenwelle voneinander entfernt waren, konnte erreicht werden, dass nur ein Elektron pro Periode durch das NT geleitet wurde (s. Abb. 8.2). Mit einem derartigen Aufbau ist die Realisierung eines Stromnormals möglich.

An Stelle von Nanotubes ist es auch denkbar DNA zu verwenden, um diese zu strecken. Dabei sollte die DNA mit einem Ende am Substrat gebunden werden. Mit der akustisch getriebenen Strömung soll dann eine Streckung der DNA erfolgen.

Die Wirkung einer Oberflächenwelle auf einen Flüssigkristall deutet bereits die Möglichkeit an eine Oberflächenwelle in situ abzubilden. Mit erweiterten Methoden die Spaltdicke zu definieren, sollte es durchaus möglich sein den Kontrast, den die Wirkung der Oberflächenwelle auf einen Flüssigkristall zeigte, stärker zu verdeutlichen, so dass eine Anzeige der Anwesenheit der Oberflächenwelle möglich ist. Mit derart verbesserten Methoden ist es

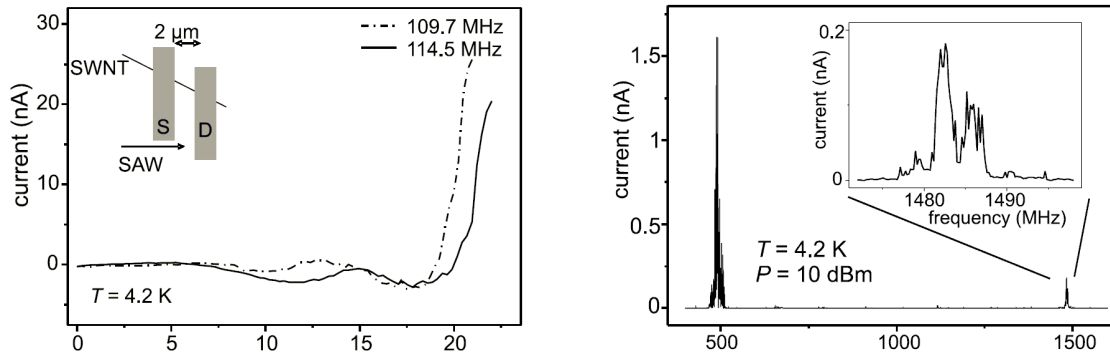


Abbildung 8.1: Im linken Bild ist die Abhängigkeit eines akustisch induzierten Stroms von der HF-Leistung dargestellt. Im rechten Bild sieht man die Abhängigkeit von der HF-Frequenz. Weil mit dem Bauteil die Grundfrequenz und die 3. Harmonische angeregt werden konnten, sieht man zwei Peaks. Die Anregung der 3. Harmonischen war nicht so effektiv wie bei der Grundfrequenz, wodurch sich die unterschiedlichen Peakhöhen erklären lassen.

auch vorstellbar, dass die Amplituden- oder Intensitätsverteilung im Schallpfad untersucht werden kann.

Von A. Müller [Mueller04] wurden bereits Messungen begonnen, mit denen die Anwesenheit eines Ferroelektrikums in der Nähe der Oberflächenwelle detektiert werden kann. Bei diesen Untersuchungen wurde auch der Phasenübergang des Ferroelektrikums in den paraelektrischen Bereich untersucht. Ähnliche Untersuchungen können auch mit Flüssigkristallen denkbar, da auch ferroelektrische Flüssigkristalle existieren.

## 8.2 Fluidik mit Scherwellen

Scherwellenbauteile finden ihre hauptsächliche Verwendung für sensorische Aufgaben. Dass Scherwellenbauteile auch für fluidische Aufgaben verwendet werden können war neu.

Es bietet sich an dieser Stelle an, beide Eigenschaften zu kombinieren. Man hat dadurch die Möglichkeit eine Veränderung eines Fluids während eines fluidischen Vorgangs zu beobachten. Da wäre einmal die Beobachtung des Ablaufs eines chemischen Vorgangs, der durch Mischen unterstützt wird. Verändern sich die Konzentration der Edukte und Produkte mit einer Auswirkung auf die Leitungseigenschaften, pH-Wert oder Schallgeschwindigkeit der Lösung kann dies im Verlauf des Mischens beobachtet werden und der Ablauf des Mischens gesteuert werden. Da die Aufnahme des Detektionssignals von einem Messaufbau übernommen werden kann und nur eine Größe beinhaltet ist es durchaus denkbar, dass ein solcher Mischprozess automatisiert ablaufen kann ohne, dass ein Eingriff von außen notwendig ist. Die sensorischen Eigenschaften ermöglichen es auch einen Massenbelag zu detektieren. Erste einfache Versuche zeigten, dass eine Vesikellösung auf der Oberfläche eine Membran bilden, die die Propagation der Scherwelle beeinflusst. Dieser Einfluss kann mit einem Netzwerkanalysator gemessen werden und es zeigte sich auch die Möglichkeit, diesen Oberflächenprozess zeitaufgelöst zu beobachten. Damit können Fragestellungen an die Dyna-

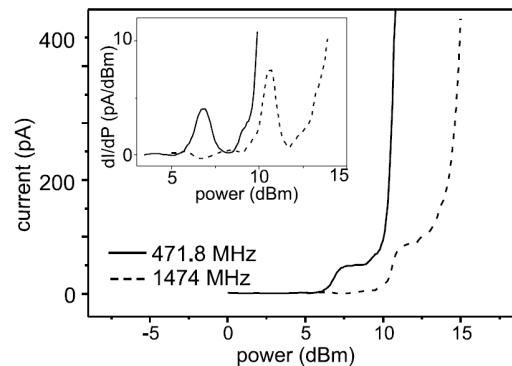


Abbildung 8.2: Wie für die Messkurven aus Abb. 8.1 wurde der akustisch induzierte Strom in Abhängigkeit von der HF-Leistung gemessen. Die Länge des Nanotubes entsprach der halben Wellenlänge der Oberflächenwelle. Das Aussehen der P-I-Kennlinie ändert sich deutlich. Es bildet sich ein Niveau aus, wo die Stromstärke unabhängig von der HF-Leistung ist. In diesem Fall verursacht das elektrische Feld der Oberflächenwelle eine Bandmodulation im Nanotube. Durch diese Modulation wird ein einzelnes Elektron transportiert [Ebbecke03].

mik des Membranbildungsprozess' beantwortet werden. Zur Zeit wird die Dynamik des Membranbildungsprozess' von M. Schneider und T. Bartusch an der Universität Augsburg genauer untersucht.

Im weiteren kann mit frequenzabhängigen Messungen der pH-Wert nahe einer Oberfläche vermessen werden, wodurch man ein pH-Abstand-Gesetz erhalten würde. Ein solches Gesetz würde auch Eingang in die Betrachtungen zur Membranbildung finden, weil dieser Prozess einen bestimmten pH-Wert benötigt [Moehwald90]. Zur Bildung einer Membran werden bestimmte Umweltbedingungen benötigt, der pH-Wert ist einer der Parameter. Derzeit wird pH-Wert für das Volumenmaterial bestimmt und eingestellt. Dabei ist aber nicht sicher gestellt, dass an der Grenzfläche Flüssigkeit/Substrat die gleichen Bedingungen herrschen. Verursacht wird dies durch die Dissoziation der Silanolgruppen der Substratoberfläche, wodurch Hydroniumionen<sup>1</sup>  $\text{H}_3\text{O}^+$  gebildet werden. Mit der Bildung der Hydroniumionen ändert sich der pH-Wert in der Nähe<sup>2</sup> des Substrats. Zudem ändert sich der Deprotonierungsgrad der Silanolgruppen mit dem pH-Wert. Aus diesen Gründen kennt niemand die wahren Bedingungen bei der Membranbildung auf einer Oberfläche. Eine Messung mit Scherwellenbauteilen kann dabei Aufschluss bringen.

Sehr interessante Eigenschaften besitzt der 36°-Schnitt des Lithiumtantalat. In der orthogonalen Richtung zur kristallographischen x-Achse lässt sich eine reine Rayleighmode anregen [Heitz98]. Hier bietet sich eine Verbindung der Fluidik mit Rayleighmoden mit der Sensorik mit Scherwellen an. So kann die Dynamik einer biochemischen Reaktion während des Mischens untersucht und gesteuert werden. Im weiteren kann angedacht werden, die Scherwelle zur Energieübertragung zur Rayleighwellenerzeugung zu verwenden.

Auf YZ-LiNbO<sub>3</sub> kann die Übertragung auch mit einer Rayleighwelle vorgenommen wer-

<sup>1</sup>auch Oxoniumionen genannt

<sup>2</sup>in etwa der Debyelänge

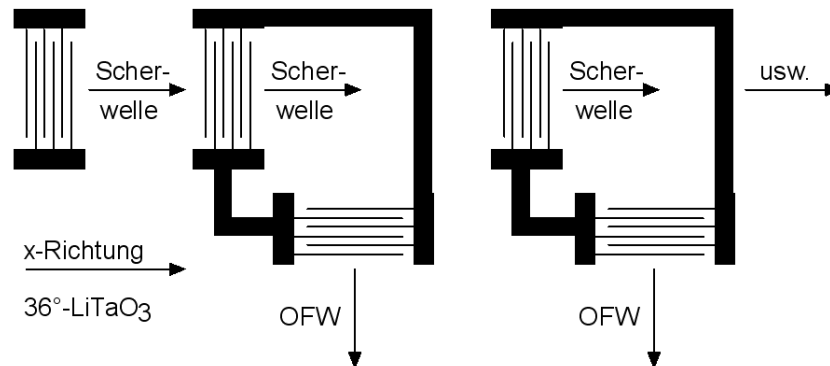


Abbildung 8.3: Möglichkeit der Energieübertragung mit Scherwellen; Die Scherwelle wird mit einem Schallwandler (links) erzeugt, eine Reihe von Schallwandlern empfängt die Scherwelle und setzt sie wieder in ein elektrisches Signal um. Mit planaren Leitungen wird das Signal zu weiteren Schallwandlern gegeben, die um  $90^\circ$  gedreht sind. Diese erzeugen dann Rayleighwellen.

den. Durch einen solchen Aufbau kann mit einer angesteuerten Quelle eine Vielzahl von Mischerkammern aktiv betrieben werden. Eine weitere Möglichkeit ist vorstellbar, wenn man die Welle an der Kristallkante reflektieren lässt, die im  $45^\circ$  Winkel im Schallpfad liegt. Die Mode, der um  $90^\circ$  abgelenkten Welle, müsste sich ändern.

Die Verwendung eines Scherwellenbauteils als Sensor, wird z.Z. ebenfalls an der Universität Augsburg durchgeführt. M. Schneider und D. Steppich untersuchen, wie mit Scherwellen die Viskoelastizität einer Membran untersucht werden kann. Ein möglicher Aufbau und Versuchsablauf wird so aussehen, dass man mit einem kurzen Puls einer Scher- oder Rayleighwelle die Membran stört und mit einer zweiten Scherwelle, deren Schallpfad senkrecht zur ersten Welle verläuft, das Verhalten der Membran untersucht. Durch das Relaxationsverhalten der Membran lässt Rückschlüsse auf ihre Elastizität zu.

### 8.3 Fluidiksysteme mit kontinuierlichen Fluss und Separation

Die Trennung verschiedener Stoffe in einer Lösung ist eine der Hauptaufgaben, die ein Chip-System bewältigen können muss.

Der Separationschip ist in der Lage in einem laufenden fluidischen Fluss eine Trennung vorzunehmen. Bei der Versuchsdurchführung wurde das Hauptaugenmerk darauf gelegt, elektrisch geladene Teilchen zu trennen. Verwendet man eine nicht geradlinig begrenzte Elektrodenstruktur, kann man eine planare Dielektrophorese realisieren und Teilchen aufgrund ihrer Polarisierbarkeit trennen. Ein besonders schönes Beispiel dafür wäre die Trennung halbleitender und metallischer Nanotubes. Ein Vorteil bestünde darin, dass im Vergleich zu bisherigen Versuchen [Krupke03], die Ausbeute einer Trennung deutlich über



100 pg liegen sollte.

In einem völlig anderem Zusammenhang kann der gleiche Aufbau dazu verwendet werden, das Verhalten eines bei der Blutgerinnung essentiellen Proteins, dem von Willebrand-Faktor [Sadler98], zu untersuchen. Der von Willebrandfaktor-Faktor ist ein globuläres Protein, das sich unter Einwirkung eines Scherflusses aufwickelt. Im menschlichen Körper erfüllt es die Funktion an der Stelle eines verletzten Blutgefäßes ein Netzwerk zu bilden, an dem die Blutplättchen haften können, wodurch die Blutgerinnung initiiert wird und der Wundverschluss einsetzen kann. Erste einfache Versuche, wie er auch in Abb. 5.5 auf Seite 79 skizziert ist, zeigen ein Aufrollen des Proteins im akustisch getriebenen Fluss. Dazu wurde ein Tropfen einer Lösung mit dem von Willebrand-Faktor auf einen Oberflächenwellenchip gegeben. Die Oberflächenwelle mischte den Tropfen, wodurch auch der notwendige Scherfluss erzeugt wurde. Nach dem Mischvorgang wurde das trockene Substrat mit einem AFM untersucht. Die AFM-Aufnahmen ergaben eine Strukturbildung des Proteins, das nicht mehr in seiner globulären Form vorlag, sondern ausgerollt war. Um die Flussbedingungen genauer zu kontrollieren findet ein akustisch getriebenes Fluidiksystem Einsatz, das die Verwendung eines kontinuierlichen Flusses ermöglicht. Das Chiplayout ähnelt dabei dem Separatorchip aus Abb. 6.1 auf Seite 94. Diese Arbeit wird zur Zeit von S. Nuschele und M. Schneider an der Universität Augsburg durchgeführt und hat das Ziel herauszufinden, welche Bedingungen und Kräfte für das Aufrollen des Proteins verantwortlich sind.

Eine weitere Anwendung akustisch getriebener Fluidiksysteme mit kontinuierlichen Fluss in Kombination mit der Separation liegt im Sortieren biologischen Materials. Als Versuche dienen hierzu zuerst fluoreszenzmarkierte Vesikel. Vesikel sind micellenartige Gebilde, die aus Lipiden bestehen. Die Lipide können je nach Art geladen sein. Da bei Herstellung der Vesikel definiert werden kann, woraus die Vesikel bestehen, kann die Ladung, Zusammensetzung und Größe eines einzelnen Vesikels gezielt definiert werden. Durch diese Möglichkeit eignen sich Vesikel hervorragend als Testsysteme. Im Versuche gibt zwei unterschiedlich geladene Vesikel mit unterschiedlicher Fluoreszenzmarkierung in die Fluidische Bahn des Separators (s. Abb. 6.1 auf S. 94). Nach Durchführung der Separation sollten, die unterschiedlich geladenen Vesikel in beiden Kreisläufen getrennt sein, was man an den unterschiedlichen Farben des Fluoreszenzsignals sehen kann. Weil Vesikel auch für natürliche Zellen Testobjekte sind, können die Versuche auf Zellen ausgeweitet werden. Rote Blutkörperchen können von einer degenerativen Krankheit befallen werden. Dabei finden sich in der Zellmembran statt der negativen Lipide einer gesunden Zelle positive Lipide. Mit dem gleichen Aufbau sollte es daher möglich sein gesunde und kranke Zellen voneinander zu trennen.

## 8.4 Elektrophorese von PCR-Produkten

Die Gelelektrophorese ist eine der zentralen Anwendungen der Bioanalytik. In dieser Arbeit wurde gezeigt, dass eine Gelelektrophorese auch auf einem mikrofluidischen System auf Oberflächenwellenbasis verwirklicht werden kann. Eine weitere Anwendung aus dem Bereich der Bioanalytik ist die PCR-Reaktion.

Die Durchführung einer PCR (Polymerase-Ketten-Reaktion) auf einem Oberflächenwellen-chip wurde von der Fa. Advalytix AG, Brunnthal, gezeigt. Die PCR wird dazu genutzt um DNA zu vervielfältigen. Das Produkt einer PCR wird meist mit einer Gelelektrophorese untersucht. Eine Kombination der beiden Anwendungen auf einem Chip wäre ein weiterer Schritt in Richtung selbständig arbeitendes Labor auf einem Chip (Lab-on-a-chip). Der Ablauf einer Untersuchung sieht so aus, dass man zuerst die PCR durchführt. Bei Durchführung der PCR (Abb. 8.4) gibt man zu einer Lösung, die die zu kopierende DNA enthält, alle vier dNMP's hinzu, das Enzym Polymerase, einen Puffer und zwei sog. Primer. Die Primer sind kurze DNA-Stücke, die zu bestimmten Stellen der zu kopierenden DNA komplementär sind und bestimmen Anfang und Ende des zu kopierenden DNA-Abschnitts. Zur Durchführung der PCR werden bis zu 40 Temperaturzyklen durchgefahen. Dabei wird der Tropfen auf bis zu 95°C erhitzt. Damit der Tropfen nicht verdunstet, wird er mit Öl abgedeckt. Beim Durchfahren der Zyklen wird die zu kopierende DNA aufgeschmolzen (der Doppelstrang zerfällt zu zwei Einzelsträngen). Die Polymerase bindet an die Einzelstränge. Fügt aus den dNMP's entlang der 5' nach 3'-Richtung einen neuen komplementären Strang an. Die Anzahl der DNA-Abschnitte hat sich nach einem Zyklus verdoppelt.

Nach Durchführung der PCR wird das PCR-Produkt vom Öltropfen getrennt. Das PCR-Produkt wird durch eine Oberflächenwelle von der PCR-Einheit zur Gelelektrophorese-Einheit transportiert. Dort wird das Produkt elektrophoretisch getrennt und kann untersucht werden.

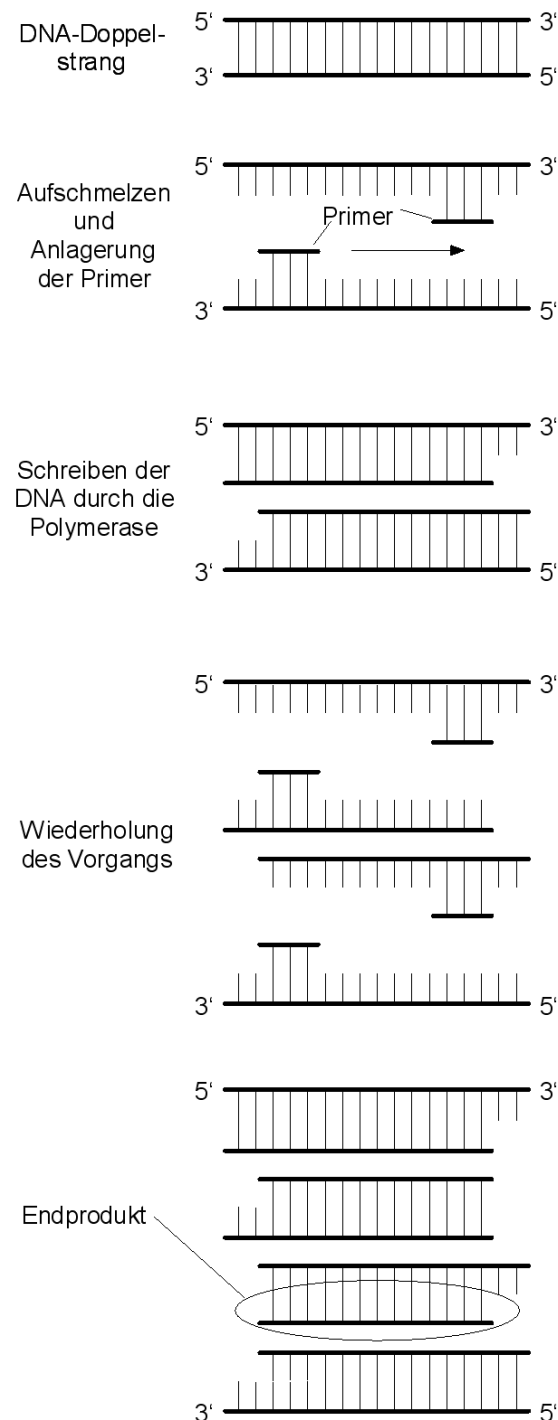


Abbildung 8.4: Schematischer Ablauf einer PCR, DNA wird durch Polymerase vervielfältigt. Die DNA wird wiederholt aufgeschmolzen, Primer angelagert und durch die Polymerase ein komplementärer Strang geschrieben. Nach  $n$  Zyklen gewinnt man im Idealfall  $2^n$  Kopien des DNA-Abschnitts, der durch die beiden Primer definiert wurde.



# Anhang A

## Konstanten und Berechnungen

### Konstanten

Elementarladung  $e = 1,602176462(63) \cdot 10^{-19} \text{ C}$

Avogadrokonstante  $N_A = 6,02214199(47) \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

Faradaykonstante  $F = e \cdot N_A = 96485,3415(39) \text{ Cmol}^{-1}$

elektrische Feldkonstante des Vakuum  $\varepsilon_0 = 8,854187817 \cdot 10^{-12} \text{ AsV}^{-1}\text{m}^{-1}$

Boltzmannkonstante  $k_B = 1,3806503(24) \cdot 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$

molare Gaskonstante  $R = k_B \cdot N_A = 8,314472(15) \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$

atomare Masseneinheit  $u = 10^{-3} \cdot N_A^{-1} \cdot \text{kg} \cdot \text{mol}^{-1} = 1,66053873(13) \cdot 10^{-27} \text{ kg}$

Erdbeschleunigung  $g = 9,80665 \text{ ms}^{-2}$

für rot 128°-Y cut X Prop. LiNbO<sub>3</sub>

longitudinale Wellengeschwindigkeit:  $v_l = 6,97 \text{ kms}^{-1}$

transversale Wellengeschwindigkeit:  $v_t = 4,22 \text{ kms}^{-1}$

Schallgeschwindigkeit in Wasser bei 20°C:  $c = 1483 \text{ ms}^{-1}$

Oberflächenspannung von Wasser bei 20°C:  $\sigma = 0,0729 \text{ Nm}^{-1}$

Dichte von Wasser bei 20°C:  $\rho = 998 \text{ kgm}^{-3}$

Viskosität von Wasser bei 20°C:  $\eta = 1,025 \cdot 10^{-3} \text{ Nsm}^{-2}$

Spezifische Wärmekapazität von Wasser bei 20°C:  $c_p = 4186 \text{ Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$

Dielektrische Konstante von Wasser:  $\varepsilon = 80,1$

Schallgeschwindigkeit in SiO<sub>2</sub> bei 20°C:  $c = 3158 \text{ ms}^{-1}$

Dichte von Natriumchlorid:  $\rho = 2165 \text{ kgm}^{-3}$

## Rayleighwellengeschwindigkeit

Die Lösung zu Gl. (2.28) lautet:

$$v_R = \frac{v_t}{3} \left( 6 \frac{\sqrt[3]{45v_l v_t^2 - 17v_l^3 + 3\sqrt{3}\sqrt{-64v_t^6 + 107v_t^4 v_l^2 - 62v_t^2 v_l^4 + 11v_l^6}}}{v_l} - \right. \\ \left. 12 \frac{-6v_t^2 + v_l^2}{\sqrt[3]{45v_l v_t^2 - 17v_l^3 + 3\sqrt{3}\sqrt{-64v_t^6 + 107v_t^4 v_l^2 - 62v_t^2 v_l^4 + 11v_l^6}}} + 24 \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{A.1})$$

## Berechnung des OFW-E-Felds im oberen Halbraum

Zur Berechnung des Feldes einer Oberflächenwelle im oberen Halbraum wurde folgende Vorgehensweise gewählt. Die Oberflächenwelle erzeugt an der Oberfläche nach Gl. (2.30) das Feld

$$\mathbf{E} = -\nabla\Phi = -k_R\Phi_0 \cdot e^{i(k_R x_1 - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} i \\ 0 \\ b \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

Für einen Punkt außerhalb des Festkörpers sieht das äquivalent zu einer periodischen Oberflächenladungsdichte aus. Formel schreibt sich dies zu

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = \int d\mathbf{E} = \int \frac{\mathbf{r}dQ}{4\pi\epsilon_0 r^3} = \int \frac{\mathbf{r}DdA}{4\pi\epsilon_0 r^3} = \int \frac{\mathbf{r}Ddx'_1 dx'_2}{4\pi\epsilon_0 r^3} = \\ \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_0 e^{i(kx'_1 - \omega t)}}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{(x_1 - x'_1)\mathbf{e}_1 + (x_2 - x'_2)\mathbf{e}_2 + x_3\mathbf{e}_3}{[(x_1 - x'_1)^2 + (x_2 - x'_2)^2 + x_3^2]^{\frac{3}{2}}} dx'_1 dx'_2 \quad (\text{A.3})$$

$$\text{mit } \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{x}{(x^2 + R^2)^{\frac{3}{2}}} dx = 0 \text{ und } \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dx}{(x^2 + R^2)^{\frac{3}{2}}} = \frac{2}{R^2} \text{ gilt nun}$$

$$E_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_0 e^{i(kx'_1 - \omega t)}}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{x_1 - x'_1}{[(x_1 - x'_1)^2 + (x_2 - x'_2)^2 + x_3^2]^{\frac{3}{2}}} dx'_1 dx'_2 = \\ \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_0 e^{i(kx'_1 - \omega t)}}{2\pi\epsilon_0} \cdot \frac{(x_1 - x'_1)}{(x_1 - x'_1)^2 + x_3^2} dx'_1 \quad (\text{A.4})$$

und

$$E_2 = 0 \quad (\text{A.5})$$

erhält man bei Integration nach  $x'_2$ . Analog zu  $E_1$  nun

$$E_3 = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_0 e^{i(kx'_1 - \omega t)}}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{x_3}{[(x_1 - x'_1)^2 + (x_2 - x'_2)^2 + x_3^2]^{\frac{3}{2}}} dx'_1 dx'_2 =$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{D_0 e^{i(kx'_1 - \omega t)}}{2\pi\epsilon_0} \cdot \frac{x_3}{(x_1 - x'_1)^2 + x_3^2} dx'_1 \quad (\text{A.6})$$

Die beiden verbleibenden Integrale löst man mit Hilfe des Residuums. Es gilt hierbei

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iks} \cdot \frac{s}{s^2 + z^2} ds = -2\pi i \cdot \sum_{\substack{k=1 \\ \text{Im}(s_k) < 0}}^n \text{Res} \left( e^{-iks} \cdot \frac{s}{s^2 + z^2} \right) \Big|_{s=s_k} =$$

$$-2\pi i \cdot \sum_{\substack{k=1 \\ \text{Im}(s_k) < 0}}^n \lim_{s \rightarrow s_k} \frac{1}{(m_k - 1)!} \cdot \frac{d^{m_k-1}}{ds^{m_k-1}} \left[ e^{iks} \cdot \frac{s}{s^2 + z^2} (s - s_k) \right] \quad (\text{A.7})$$

Die Singularitäten liegen an den Stellen  $s_1 = iz$  und  $s_2 = -iz$  und haben jeweils die Ordnung  $m_{1,2} = 1$ . Für das Integral ergibt sich so

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iks} \cdot \frac{s}{s^2 + z^2} ds = -2\pi i \cdot \lim_{s \rightarrow -iz} e^{-iks} \cdot \frac{s}{s^2 + z^2} (s + iz) = -\pi i e^{-kz} \quad (\text{A.8})$$

Das zweite Integral wird auf ähnlichem Wege gelöst.

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iks} \cdot \frac{z}{s^2 + z^2} ds = 2\pi i \cdot \sum_{\substack{k=1 \\ \text{Im}(s_k) < 0}}^n \text{Res} \left( e^{-iks} \cdot \frac{z}{s^2 + z^2} \right) \Big|_{s=s_k} =$$

$$2\pi i \cdot \sum_{\substack{k=1 \\ \text{Im}(s_k) < 0}}^n \lim_{s \rightarrow s_k} \frac{1}{(m_k - 1)!} \cdot \frac{d^{m_k-1}}{ds^{m_k-1}} \left[ e^{-iks} \cdot \frac{z}{s^2 + z^2} (s - s_k) \right] \quad (\text{A.9})$$

Die Singularitäten liegen an den Stellen  $s_1 = iz$  und  $s_2 = -iz$  und haben jeweils die Ordnung  $m_{1,2} = 1$ . Für das Integral ergibt sich so

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iks} \cdot \frac{z}{s^2 + z^2} ds = 2\pi i \cdot \lim_{s \rightarrow -iz} e^{-iks} \cdot \frac{z}{s^2 + z^2} (s + iz) = -\pi e^{-kz} \quad (\text{A.10})$$

Angewandt auf das Integral für die x-Komponente des E-Feld heißt das bei Verwendung der Substitution  $u = x_1 - x'_1$

$$E_1 \stackrel{u=x-x'}{=} \frac{D_0 e^{i(kx_1 - \omega t)}}{2\pi\epsilon_0} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iku} \frac{u}{u^2 + z^2} du = - \underbrace{\frac{D_0}{2\epsilon_0}}_{E_0} i e^{i(kx_1 - \omega t)} e^{-kx_3} \quad (\text{A.11})$$

Für die z-Komponente des E-Feld wird die gleiche Substitution  $u = x_1 - x'_1$  angewandt und man erhält

$$E_3 \stackrel{u=x-x'}{=} \frac{D_0 e^{i(kx_1 - \omega t)}}{2\pi\epsilon_0} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-iku} \frac{z}{u^2 + z^2} du = - \frac{D_0}{2\epsilon_0} e^{i(kx_1 - \omega t)} e^{-kx_3} \quad (\text{A.12})$$

Das Vektorfeld sieht aus wie

$$\mathbf{E} = E_0 \cdot e^{-kx_3} e^{i(kx_1 - \omega t)} \cdot \begin{pmatrix} -i \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

## Lösung zum Physikalischen Pendel

Wird ein Dipol in einem inhomogenem elektrischen Feld zur Drehung gebracht vollzieht sich diese in mit der Periodendauer  $T$ . Bei beliebig Auslenkung um den Winkel  $\alpha$  hat der Dipol anfangs die Energie  $W = -pE \cos \alpha$ , zu einem beliebigen anderen Zeitpunkt die Energie  $W = -pE \cos \varphi + 0,5I\dot{\varphi}^2$ . Setzt man nach dem Energierhaltungssatz beide Energien gleich, erhält man eine Bewegungsgleichung

$$\sqrt{\frac{2pE}{I}} dt = \frac{d\varphi}{\sqrt{\cos \alpha - \cos \varphi}} \quad (\text{A.13})$$

Löst man diese Bewegungsgleichung und sucht nach der Periodendauer erhält man

$$T = 2\pi \sqrt{\frac{I}{pE}} \cdot \left[ 1 + \sum_{i=1}^{\infty} \left( \frac{\prod_{k=1}^i 2k - 1}{\prod_{k=1}^i 2k} \right)^2 \cdot \left( \sin \frac{\alpha}{2} \right)^{2i} \right] \quad (\text{A.14})$$



# Anhang B

## Weitere Informationen zu den Experimenten

### Verwendung von Elektrolyten im Experiment

#### Herstellen verschieden konzentrierter Lösungen

Benötigt man zur Durchführung einer Messreihe eine größere Anzahl verschieden konzentrierter Lösungen, so ist es nützlich sich zuerst eine Stammlösung großer Konzentration  $c$  anzusetzen. Von dieser Stammlösung entnimmt man einen Teil  $V_S$  und verdünnt diesen zur gewünschten Konzentration  $c'$ . Es stellte sich hier die Frage, wieviel Lösungsmittel  $\Delta V$  gibt man zu  $V_S$  hinzu? Berechnet man  $\Delta V$  erhält man als Lösung

$$\Delta V = V_S \left( \frac{c}{c'} - 1 \right) \quad (\text{B.1})$$

#### Dichteänderung einer Salzlösung

Gibt man Salz in ein Lösemittel, so dissoziieren die ionischen Bestandteile des Salzes. Dabei ändert sich die Dichte  $\rho_l$  des Lösemittels zu  $\rho_s$ . Für die Dichte des Lösemittels gilt

$$\rho_l = \frac{m_l}{V} \quad (\text{B.2})$$

wohingegen für das Lösemittel mit Salz gilt

$$\rho_s = \frac{m_l + m_s}{V} \quad (\text{B.3})$$

Die Masse des Salzes bestimmt sich bei Konzentration  $c$  zu

$$m_s = cVM_s \quad (\text{B.4})$$

mit der molaren Masse des Salzes  $M_s$ . Fasst man die drei Gleichungen zusammen. Erhält man als Dichte des Lösemittels

$$\rho_s = \rho_l + cM_s \quad (\text{B.5})$$

## Leitfähigkeit von NaCl-Lösungen

Die Leitfähigkeit einer NaCl-Lösung kann durch alleinige Kenntnis der Salzkonzentration nur bedingt errechnet werden. An dieser Stelle hilft man sich mit Tabellen oder Diagrammen weiter, in denen Messwerte aufgetragen sind.

Konzentration in mol·l <sup>-1</sup>	0,0001	0,001	0,01	0,1	0,2	0,3	0,4	
Leitfähigkeit in S·m <sup>-1</sup>	0,00107	0,0106	0,102	0,9	1,7	2,4	3,1	
Konzentration in mol·l <sup>-1</sup>	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0	1,2	1,4
Leitfähigkeit in S·m <sup>-1</sup>	3,9	4,6	5,3	6,1	6,6	7,3	8,7	9,7
Konzentration in mol·l <sup>-1</sup>	1,6	1,8	2,0	2,5	3,0	3,5	4,0	5,0
Leitfähigkeit in S·m <sup>-1</sup>	11,0	11,9	13,0	15,2	17,1	18,8	20,1	21,8

Tabelle B.1: Gleichstromleitfähigkeit einer NaCl-Lösung bei 20°C

Häufig findet man statt der Konzentration die Gewichtsprozente angegeben. Die Gewichtsprozente berechnen sich nach

$$\frac{m_s}{m_s + m_l} \cdot 100\% = \left(1 + \frac{\rho_l}{cM_s}\right)^{-1} \cdot 100\% \quad (\text{B.6})$$

um. Dabei stehen  $m_s$  für die Masse des Salzes,  $m_l$  für die Masse des Lösemittels,  $\rho_l$  für die Dichte des Lösemittels,  $c$  für die Lösemittelkonzentration und  $M_s$  für die molare Masse des Salzes. Beim Produkt  $cM_s$  macht die Einheit keine Probleme, da gilt  $[cM_s] = 1 \frac{\text{mol}}{\text{l}} \cdot \frac{\text{g}}{\text{mol}} = 1 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$

## Temperaturabhängigkeit der Äquivalentleitfähigkeit

Die Äquivalentleitfähigkeit  $\Lambda$  einer Lösung ist temperaturabhängig. Der Zusammenhang zwischen der Äquivalentleitfähigkeit einer Bezugstemperatur  $\theta_1$  und einer zweiten Temperatur  $\theta_2$  wird mit

$$\Lambda_{\theta_1} = \Lambda_{\theta_2} [1 + k(\theta_1 - \theta_2)] \quad (\text{B.7})$$

angegeben. Für  $k$  gelten die Werte

Elektrolyt	k in K <sup>-1</sup>
Salze	0,023
Säuren	0,0154
Wasser	0,058
Basen	0,018

## Dichteänderung einer Salzlösung

Gibt man Salz in ein Lösemittel, so dissoziieren die ionischen Bestandteile des Salzes. Dabei ändert sich die Dichte  $\varrho_l$  des Lösemittels zu  $\varrho_s$ . Für die Dichte des Lösemittels gilt

$$\varrho_l = \frac{m_l}{V} \quad (\text{B.8})$$

wohingegen für das Lösemittel mit Salz gilt

$$\varrho_s = \frac{m_l + m_s}{V} \quad (\text{B.9})$$

Die Masse des Salzes bestimmt sich bei Konzentration  $c$  zu

$$m_s = cVM_s \quad (\text{B.10})$$

mit der molaren Masse des Salzes  $M_s$ . Fasst man die drei Gleichungen zusammen. Erhält man als Dichte des Lösemittels

$$\varrho_s = \varrho_l + cM_s \quad (\text{B.11})$$

## Schallgeschwindigkeit in NaCl-Lösungen

Der Salzgehalt einer Lösung verändert auch die Schallgeschwindigkeit in der Lösung. Es gilt in Näherung [Medwin75] der Zusammenhang

$$v = 1449,2 \frac{\text{m}}{\text{s}} + 4,6 \frac{\text{m}}{\text{sK}} \cdot \theta - 0,055 \frac{\text{m}}{\text{sK}^2} \cdot \theta^2 + 0,00029 \frac{\text{m}}{\text{sK}^3} \cdot \theta^3 + \left( 1,39 \frac{\text{m}}{\text{s}} - 0,012 \frac{\text{m}}{\text{sK}} \cdot \theta \right) \cdot \left( \frac{c \cdot 58,44 \frac{\text{g}}{\text{mol}}}{998 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}} - 35 \right) \quad (\text{B.12})$$

mit der Temperatur  $\theta$  in °C und der Salzkonzentration  $c$ .

## Verwendete Messgeräte

Zur Durchführung aller Experimente wurden im Labor und Reinraum folgende Geräte benutzt:

- HF-Generator von Fa. Rohde & Schwarz, Signalgenerator SML01
- HF-Generator von Fa. Rohde & Schwarz, Signalgenerator SML02
- HF-Generator von Fa. Rohde & Schwarz, Signalgenerator SMP02
- HF-Generator von Fa. Rohde & Schwarz, Signalgenerator SMG
- HF-Generator von Fa. Agilent, Signalgenerator 83650L
- HF-Generator von Fa. Agilent, Signalgenerator
- HF-Generator von Fa. Hewlett-Packard, Signalgenerator 8647A
- 500 mW HF-Verstärker von Mini-Circuits Modell zhl-2010(sma)
- 500 mW HF-Verstärker von Mini-Circuits Modell zhl-2
- Netzwerkanalysator von Fa. Hewlett-Packard, Modell 8716D
- Netzwerkanalysator von Fa. Rhode & Schwarz, ZVR
- Spannungsversorgung von Fa. Hameg Triple Power Supply HM7042
- Probenhalter, gekühlt mit einem 10W-Peltier-Element
- MikroDispenser der Fa. GeSIM mit multi-dos Steuerung und Software
- Temperaturregelgerät Peltron
- Mikroskop von Olympus, Modell SZX9
- mit CCD-Kamera von Fa. JVC Modell TK-C1360B
- Videorekorder von Fa. JVC Modell HR-DVS2 zur Filmaufzeichnung
- 500MHz-Pentium-III-Rechner mit Videokarte
- Oszilloskop von Fa. Hameg HM1507-3

- Sauerstoffplasma: Lab-Ash 100 der Fa.
- Sauerstoffplasma: Gigaetch der Fa.
- Lackschleuder: 1001S und ST146 der Fa. Convac
- Maskaligner: MJB3 der Fa. Karl Suss
- Ellipsometer: SD2300 der Fa. PLASMOS
- Ultraschallbad: Sonorex super digital der Fa. Bandelin
- UHV-Aufdampfanlage: Fa. BesTec
- PECVD-Anlage: Plasmalab 80 Plus der Fa. Oxford
- Sputteranlage: LS320S der Fa. von Ardenne Anlagentechnik
- Bonder: 1204W der FA. ME1 Marpet Enterprises
- AFM: Nanoscope IIIa der Fa. Digital Instruments

# Literaturverzeichnis

- [Ajdari00] A. Ajdari, *Phys. Rev. E* **61**, R45 (2000).
- [Alippi76] A. Alippi, A. Palma, L. Palmieri und G. Socino, *Appl. Optics* **15**, 2400 (1976).
- [Auld73] B. A. Auld, *Acoustic fields and Waves in Solids*, Band I, John Wiley & Sons, Toronto, 1973.
- [Bradley96] C. E. Bradley, *J. Acoust. Soc. Am.* **100** (1996).
- [Campbell70] J. J. Campbell und W. R. Jones, *IEEE-Transaction on Sonics and Ultrasonics* **SU-17**, 71 (1970).
- [Ebbecke03] J. Ebbecke, N. E. Fletcher, T. J. B. M. Janssen, F. J. Ahlers, M. Pepper, H. E. Beere und D. A. Ritchie, *Preprint-Server Adresse* [http://arxiv.org/PS\\_cache/cond-mat/pdf/0312/0312304.pdf](http://arxiv.org/PS_cache/cond-mat/pdf/0312/0312304.pdf) (2003).
- [Ebbecke04] J. Ebbecke, C. J. Strobl und A. Wixforth, *Phys. Rev. B* **70**, 233401 (2004).
- [Falkenhagen71] H. Falkenhagen, *Theorie der Elektrolyte*, Hirzel, Leipzig, 1971.
- [Farnell77] G. W. Farnell, *Surface Wave Filters*, John Wiley & Sons, 1977.
- [Guttenberg04] Z. Guttenberg, A. Rathgeber, S. Keller, J. O. Rädler, A. Wixforth, M. Kostur, M. Schindler und P. Talkner, *Phys. Rev. E* **70**, 056311 (2004).
- [Hanemann95] T. Hanemann, W. Haase, I. Svoboda und H. Fuess, *Liq. Cryst.* **19**, 699 (1995).
- [Heitz98] M. Heitz, *Untersuchungen mit akustischen Oberflächenwellen an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen*, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg *Universitätsbibliothek Adresse* <http://archiv.ub.uni-heidelberg.de/volltextserver/volltexte/2000/628/pdf/heitz.pdf>, 1998.
- [Herminghaus99] S. Herminghaus, H. Gau und W. Mönch, *Advanced Materials* **11**, 1393 (1999).

- [Hjerten61] S. Hjertén, *Biochim Biophys Acta.* **53**, 514 (1961).
- [Hutson62] A. R. Hutson und D. L. White, *J. Appl. Phys.* **33**, 40 (1962).
- [Iijima91] S. Iijima, *Nature* **354**, 56 (1991).
- [Ingebrigtsen70] K. A. Ingebrigtsen, *J. Appl. Phys.* **41**, 454 (1970).
- [Jacoby00] B. Jakoby, J. Bastemeijer und M. J. Vellekoop, *Sensors and Actuators* **82**, 83 (2000).
- [Brzoska94] F. R. J. B. Brzoska, I. Ben Azouz, *Langmuir* **10**, 4367 (1994).
- [Jones01] T. B. Jones, M. Gunji, M. Washizu und M. J. Feldmann, *J. Appl. Phys.* **89**, 1441 (2001).
- [Kondoh94] J. Kondoh und S. Shiokawa, *Jap. J. Appl. Phys.* **33**, 3095 (1994).
- [Krupke03] R. Krupke, F. Hennrich, H. v. Löhneysen und M. M. Kappes, *Science* **301**, 344 (2003).
- [Kutschera03] H.-J. Kutschera, *Lineare und nichtlinear akustophotoelektrische Wechselwirkung*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität, 2003.
- [Landau63] L. D. Landau und J. M. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik*, Band 6 Hydrodynamik, Harri Deutsch, Frankfurt am Main, 1963.
- [Lottspeich98] F. Lottspeich und H. Zorbas, *Bioanalytik*, Spektrum Akad. Verlag, Heidelberg, 1998.
- [Medwin75] H. Medwin, *J. Acoust. Soc. Am.* **58**, 1318 (1975).
- [Merck01] Merck, 2001. Sicherheitsdatenblatt für Bromphenolblau der Fa. Merck KGaA, Darmstadt.
- [Moehwald90] H. Möhwald, *Annu. Rev. Phys. Chem* **41**, 441 (1990).
- [Moriizumi87] T. Moriizumi, Y. Unno und S. Shiokawa, *Ultrasonic Symposium IEEE (New York: IEEE)* , 579 (1987).
- [Mueller04] A. C. Mueller, *Sensorische Anwendungen mit akustischen Oberflächenwellen*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität, 2004.
- [Nomura95] T. Nomura, T. Takebayashi, S. Furukawa und M. Obana, *1995 IEEE Ultrasonic Symposium* , 547 (1995).
- [Nyborg65] W. L. M. Nyborg und W. P. Mason, *Acoustic Streaming, Physical Acoustic*, Band IIB, Academic Press, New York, 1965.

- [Oh-e95] M. Oh-e, M. Ohta, S. Arantani und K. Kondo, *Proc. of the 15<sup>th</sup> International Display Research Conference (Asia Display '95)*, 577 (1995).
- [Rathgeber00] A. Rathgeber, *Manipulation und Transport von Materie in fester und flüssiger Form mittels akustischer Oberflächenwellen*, Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität, 2000.
- [Rathgeber03] A. Rathgeber, M. Wassermeier und A. Wixforth, *Preprint-Server Adresse* <http://de.arxiv.org/ftp/physics/papers/0306/0306080.pdf> (2003).
- [Rayleigh85] L. J. W. S. Rayleigh, *Proc. London Math. Soc.* **17**, 4 (1885).
- [Reynolds83] O. Reynolds, *Proc. R. Soc. London A* **35**, 84 (1883).
- [Ro00] R. Ro, S.-K. Yang, H.-Y. Lee und C.-Y. Shen, *Proc. Natl. Sci. Counc. ROC(A)* **25**, 131 (2000).
- [Sadler98] J. E. Sadler, *Annu. Rev. Biochem.* **67**, 395 (1998).
- [Saito92] R. Saito, M. Fujita, G. Dresselhaus und M. S. Dresselhaus, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2204 (1992).
- [Schadt71] M. Schadt und W. Helfrich, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 127 (1971).
- [Schaefflein03] C. G. Schäfflein, *Elektronische Eigenschaften und Manipulation von Carbon Nanotubes*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität, 2003.
- [Srinivasan03] V. Srinivasan, V. Pamula, M. Pollack und R. Fair, *Proc. of the IEEE 16th Annual International Conference on Micro Electro Mechanical Systems*, 327 (2003).
- [Shiokawa88] S. Shiokawa, Y. Matsui und T. Moriizumi, *Jap. J. of Appl. Phys.* **28**, 126 (1988).
- [Strobl01] C. J. Strobl, *Flüssigkeitstransport mit akustischen Wellen auf Kristalloberflächen*, Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität, 2001.
- [Terry81] P. Terry und M. W. P. Strandberg, *J. Appl. Phys.* **52**, 4281 (1981).
- [Tiselius37] A. Tiselius, *Trans. Faraday Soc.* **33**, 524 (1937).
- [Viovy00] J.-L. Viovy, *Rev. of Mod. Phys.* **72**, 813 (2000).
- [Wagner93] K. C. Wagner, L. Reindl und O. Männer, *1993 IEEE Ultrasonic Symposium*, 209 (1993).
- [Wallace47] P. R. Wallace, *Phys. Rev.* **71**, 622 (1947).
- [Welters98] W. J. J. Welters und L. G. J. Fokkink, *Langmuir* **14**, 1535 (1998).

- [White65] R. M. White und F. W. Voltmer, *Appl. Phys. Lett.* **7**, 314 (1965).
- [Xiao95] X.-D. Xiao, G.-Y. Liu, D. H. Charych und M. Salmeron, *Langmuir* **11**, 1600 (1995).
- [Yamamoto98] K. Yamamoto, S. Akita und Y. Nakayama, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31**, L34 (1998).



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Beteiligten danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Für die Betreuung dieser Arbeit, zahlreichen Diskussionen und der Vermittlung von Kontakten möchte ich Prof. Dr. Achim Wixforth danken. Ebenso danke ich ihm auch dafür, dass er mir die Anfertigung der Arbeit in München ermöglichte. Für die Aufnahme in München, die Nutzung der Labore und zahlreichen Diskussionen möchte ich Prof. Dr. Jörg P. Kotthaus danken. An Prof. Dr. J. O. Rädler geht mein Dank für die Erstellung des Zweitgutachtens zu der vorliegenden Arbeit. An dieser Stelle dürfen auch die Mitglieder des LS Kotthaus nicht fehlen. Es war stets eine gute Stimmung und es herrschte immer ein angenehmes Arbeitsklima. Besonders meinen Kollegen aus dem Hinterzimmer Dr. Christine Meyer, Dr. Hans-Jörg Kutschera, Dr. Jan Kraus, Stefan Beyer, Andreas Reuter und Tim Liedl möchte ich danken für zahlreiche heitere Stunden im Büro. Für die Versorgung und Instandhaltung der Geräte im Labor und im Reinraum danke ich Stefan Manus, Stefan Schöffberger, Alexander Paul, Armin Kriele, Klaus Werhahn, Wolfgang Kurpas und Dr. Bert Lorenz. Ohne diese Unterstützung wäre die Arbeit im Reinraum oder Labor nicht vom Erfolg gekrönt gewesen. Dr. Alexander „Mille“ Müller danke ich für die viele Zeit, die er sich immer genommen hat, um gemeinsam über die Probleme im Labor zu reden und dass ich nicht ganz allein der Rest der SAW-Gruppe war. Für die tolle Zusammenarbeit bei den Versuchen mit Carbonnanotubes danke Dr. Christian Schäfflein, der mit einer einfachen Idee zu mir kam, aus der man eine Menge machen konnte. Für die Unterstützung bei Problemen in Chemie und Biologie danke ich den Mitarbeitern der Fa. Advalytix AG und die Herstellung einer Vielzahl Chips, die ich in meinen Versuchen verbraucht habe. Für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit und des Projekts im Rahmen des Forschungsverbundes ForNano danke ich der Bayerischen Forschungstiftung. An den Lehrstuhl Experimentalphysik 1, Universität Augsburg, geht ebenfalls mein Dank, der nach dem erfolgreichen Aufbau nun auch über eine gute Ausstattung verfügt, mit der man erfolgreich arbeiten kann. Hier möchte ich Dr. Matthias Schneider und Dr. Jens Ebbecke für neue Anregungen und Ideen für gemeinsame Versuche danken.



# Lebenslauf

Christoph Josef Strobl , geboren am 28. November 1975 in München

September 1982 - Juli 1986	Berner Grundschule in München
September 1986 - Juli 1995	Thomas Mann-Gymnasium in München
Juni 1995	Abitur
Juli 1995 - Juni 1996	Grundwehrdienst in Gernersheim und Erding
November 1996 - Oktober 2001	Studium der Physik an der Ludwig-Maximilians-Universität in München
Mai 1998	Vordiplom in Physik
Oktober 2001	Diplom in Physik
November 2001 - Dezember 2001	selbständig tätig für die Advalytix AG, Brunnthal
Januar 2002 - Dezember 2004	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für experimentelle Halbleiterphysik Prof. Dr. J.P. Kotthaus, Ludwig-Maximilians-Universität in München
seit Oktober 2002	Promotionsstudium in Physik an der Ludwig-Maximilians-Universität in München
seit Januar 2005	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Experimentalphysik 1 Prof. Dr. A. Wixforth, Universität Augsburg



# Veröffentlichungsliste

1. *Planar microfluidic processors*, C. J. Strobl, A. Rathgeber, A. Wixforth, C. Gauer und J. Scriba, IEEE Ultrasonics Symposium, S. 246-249 (2002)
2. *Nano- and pico dispensing of fluids on planar substrates using SAW*, C. J. Strobl, Z. Guttenberg und A. Wixfoth, IEEE Trans. UFFC, Vol. 51(11), S. 1432 (2004)
3. *Carbon nanotube alignment by surface acoustic waves*, C. J. Strobl, C. Schaefflein, U. Beierlein, J. Ebbecke und A. Wixforth, Appl. Phys. Lett., Vol. 85(8), S. 1427-1429 (2004)
4. *Acoustoelectric current transport through single-walled carbon nanotube quantum dots*, J. Ebbecke, C. J. Strobl und A. Wixforth, Phys. Rev. B, Vol. 70, S. 233401-1 (2004)
5. *Acoustic manipulation of small droplets*, A. Wixforth, C. Strobl, Ch. Gauer, A. Toegl, J. Scriba und Z. Guttenberg, Annal. Bioanal. Chem, Vol. 379, S. 982-991 (2004)